

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

APPLICANT: YOSHIYUKI SUZURI ET AL. )  
FOR: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT )  
ELEMENT, ILLUMINATOR, AND DISPLAY )

CLAIM FOR PRIORITY

Mail Stop Patent Application  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

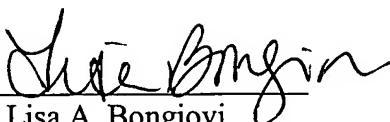
Dear Commissioner:

Enclosed herewith is a certified copy of Japanese Patent Application No. 2003-085023 filed on March 26, 2003. The enclosed Application is directed to the invention disclosed and claimed in the above-identified application.

Applicants hereby claim the benefit of the filing date of March 26, 2003, of the Japanese Patent Application No. 2003-085023, under provisions of 35 U.S.C. 119 and the International Convention for the protection of Industrial Property.

Respectfully submitted,

CANTOR COLBURN LLP

By: 

Lisa A. Bongiovi  
Registration No. 48,933  
Cantor Colburn LLP  
55 Griffin Road South  
Bloomfield, CT 06002  
Telephone: (860) 286-2929  
Customer No.: 23413

Date: March 19, 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   3 月 2 6 日  
Date of Application:

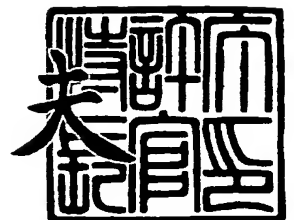
出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 8 5 0 2 3  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 0 8 5 0 2 3 ]

出      願      人            コニカミノルタホールディングス株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 4 年   1 月   5 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康



【書類名】 特許願

【整理番号】 DKT2605772

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G09F 13/22  
C09K 11/06 602  
H05B 33/14

【発明者】

【住所又は居所】 東京都日野市さくら町 1 番地コニカ株式会社内

【氏名】 硯里 善幸

【発明者】

【住所又は居所】 東京都日野市さくら町 1 番地コニカ株式会社内

【氏名】 押山 智寛

【発明者】

【住所又は居所】 東京都日野市さくら町 1 番地コニカ株式会社内

【氏名】 植田 則子

【発明者】

【住所又は居所】 東京都日野市さくら町 1 番地コニカ株式会社内

【氏名】 福田 光弘

【発明者】

【住所又は居所】 東京都日野市さくら町 1 番地コニカ株式会社内

【氏名】 北 弘志

【特許出願人】

【識別番号】 000001270

【氏名又は名称】 コニカ株式会社

【代表者】 岩居 文雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012265

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要



【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置および表示装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は、リン光スペクトルの 0-0 バンドが 300～450 nm であり、分子量が 550 以上であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  が 5.00～5.70 eV であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  とリン光性化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p3}$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$-0.1 \leq I_{p3} - I_{p1} \leq 0.5$$

【請求項 4】 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記リン光性化合物の励起三重項準位  $T_3$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.5 < T_3 - E_{a1} < 1.3$$

【請求項 5】 前記リン光性化合物が 380～480 nm にリン光発光極大波長を有することを特徴とする請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】 前記正孔輸送層に隣接し、前記発光層とは反対側にさらに正孔輸送層を有し、該正孔輸送層に含有される正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p4}$  と前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  との差が 0.1～0.7 であることを特徴とする請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$$

【請求項 7】 前記発光層に隣接する正孔輸送層の膜厚が 5～20 nm であ

ることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】 前記発光層にさらにホスト化合物を含有することを特徴とする請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】 前記正孔輸送層のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と前記ホスト化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p2}$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.3 < I_{p2} - I_{p1} < 1.0$$

【請求項 10】 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記ホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 8 又は 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < E_{a2} - E_{a1} < 0.8$$

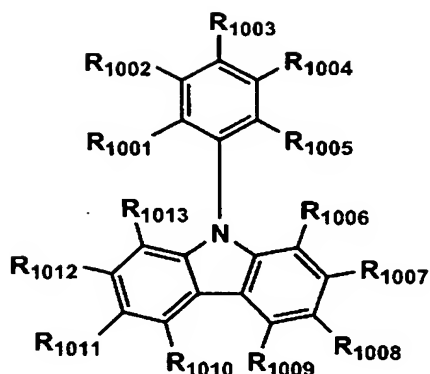
【請求項 11】 前記ホスト化合物のリン光発光波長が  $300 \sim 450 \text{ nm}$  であることを特徴とする請求項 8 ～ 10 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 12】 前記ホスト化合物はカルバゾール誘導体であることを特徴とする請求項 8 ～ 11 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 13】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 11 で表される化合物であることを特徴とする請求項 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 1】

## 一般式 11

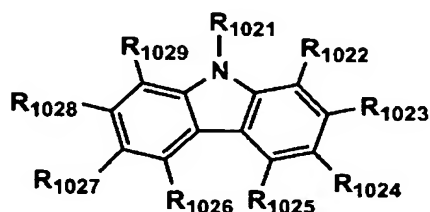


(式中、R<sub>1001</sub>～R<sub>1013</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 1 4】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 2 で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 2】

## 一般式 12

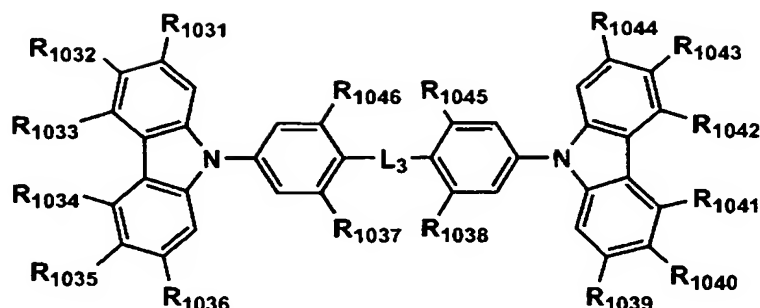


(式中、R<sub>1021</sub>は、アルキル基、シクロアルキル基、もしくはフッ化アルキル基を表し、R<sub>1022</sub>～R<sub>1029</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 1 5】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 3 で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 3】

## 一般式 13

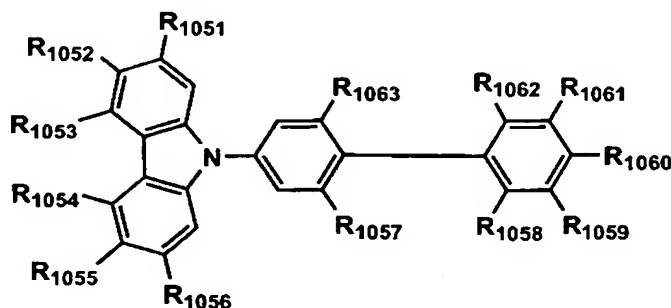


(式中、R<sub>1031</sub>～R<sub>1046</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表し、L<sub>3</sub>は2価の連結基、もしくは直接結合を表すが、直接結合の場合はR<sub>1037</sub>、R<sub>1038</sub>、R<sub>1045</sub>、R<sub>1046</sub>のうちいずれかは置換基を表す。)

【請求項 16】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 14 で表される化合物であることを特徴とする請求項 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 4】

## 一般式 14

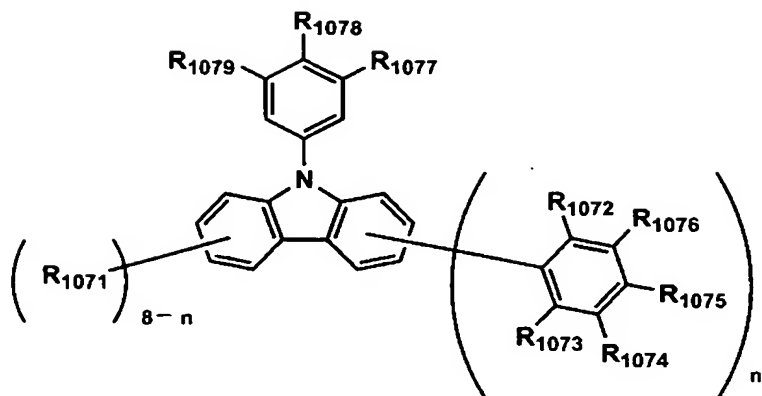


(式中、R<sub>1051</sub>～R<sub>1063</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R<sub>1057</sub>、R<sub>1058</sub>、R<sub>1062</sub>、R<sub>1063</sub>のいずれかは置換基を表す。)

【請求項 17】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 15 で表される化合物であることを特徴とする請求項 12 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 5】

## 一般式15



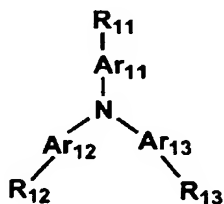
(式中、R1071～R1079は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R1072、R1073のいずれかは置換基を表す。nは、1～8の整数を表す。)

【請求項18】 前記正孔輸送材料はトリアリールアミン化合物であることを特徴とする請求項1～17のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項19】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式1で表される化合物であることを特徴とする請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 6】

## 一般式1



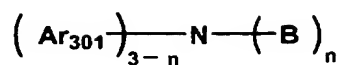
(式中、R11～R13は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項20】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式2で表される

化合物であることを特徴とする請求項 18 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 7】

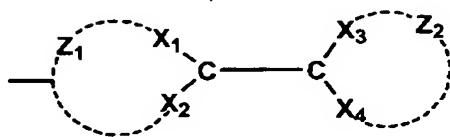
一般式 2



(式中、Ar<sub>301</sub>は、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Bは下記一般式 3 を表し、n は 1 ～ 3 の整数を表す。)

【化 8】

一般式 3

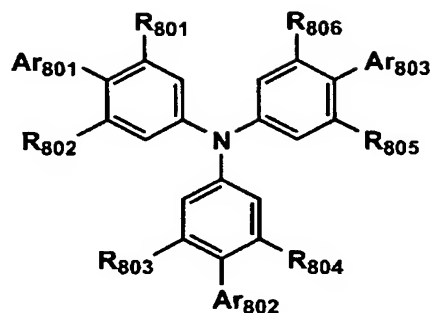


(式中、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>は、各々独立に、各々芳香族炭素環、もしくは芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、X<sub>1</sub>～X<sub>4</sub>は、各々独立に、C-R<sub>301</sub>、N、O、S、を表し、R<sub>301</sub>は、水素原子、若しくは置換基を表すが、X<sub>1</sub>～X<sub>4</sub>のうち少なくとも一つはC-R<sub>301</sub>を表し、そのときのR<sub>301</sub>は置換基を表す。)

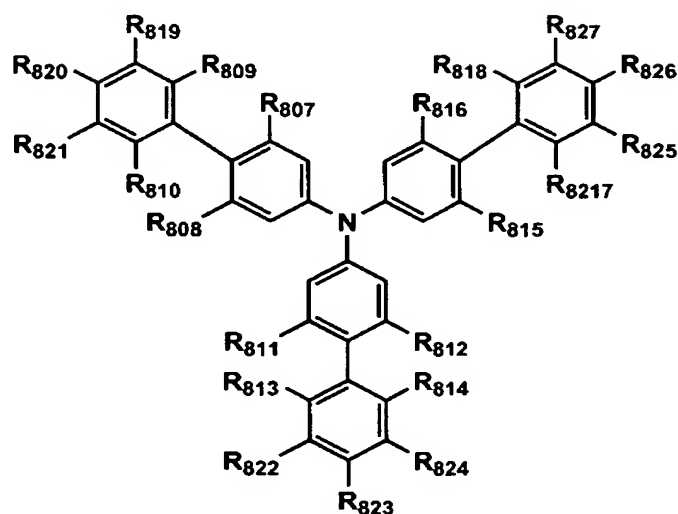
【請求項 21】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式 4-1、4-2 で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする請求項 18 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 9】

## 一般式 4-1



## 一般式 4-2

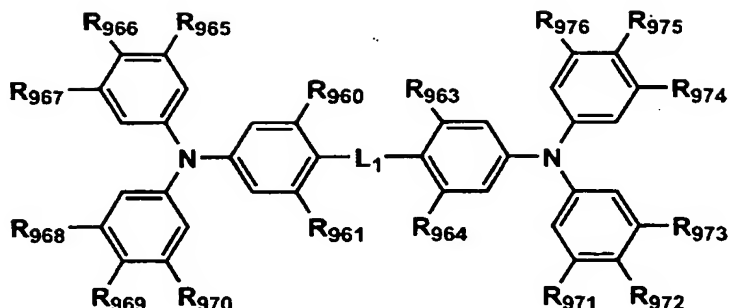


(式中、R801～R827は水素原子もしくは置換基を表す。但し、R801、R802のいずれかは置換基、R803、R804のいずれかは置換基、R805、R806のいずれかは置換基を表し、R807～R810のいずれかは置換基、R811～R814のいずれか一つは置換基、R815～R818のいずれかは置換基を表す。)

【請求項 22】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式 5 で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする請求項 18 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化10】

## 一般式5

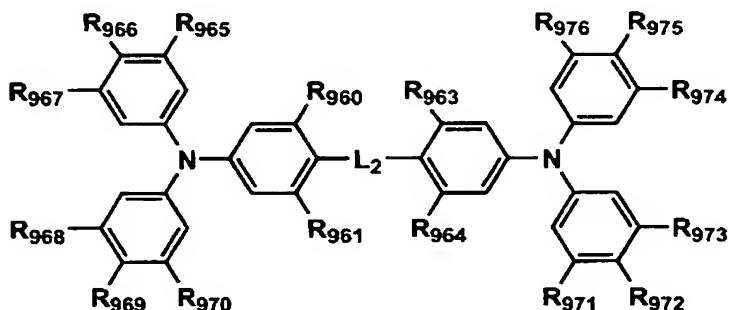


(式中、R960～R976は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、R960、R961のいずれかは置換基を表し、R963、R964のいずれかは置換基を表す。L<sub>1</sub>は、二価の連結基、もしくは直接結合を表す)

【請求項23】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式6で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化11】

## 一般式6



(式中、R960～R976は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。L<sub>2</sub>は二価のアルキル基、シクロアルキル基、もしくはフッ化アルキル基の連結基を表す。)

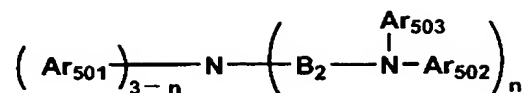
【請求項24】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式7で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



トロルミネッセンス素子。

【化 1 2】

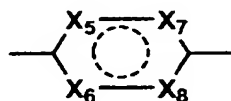
一般式 7



(式中、 $\text{B}_2$ は下記一般式 8 を表し、 $\text{Ar}_{501} \sim \text{Ar}_{503}$ は、各々独立に、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表す。 $n$ は 1～3 の整数を表す)

【化 1 3】

一般式 8

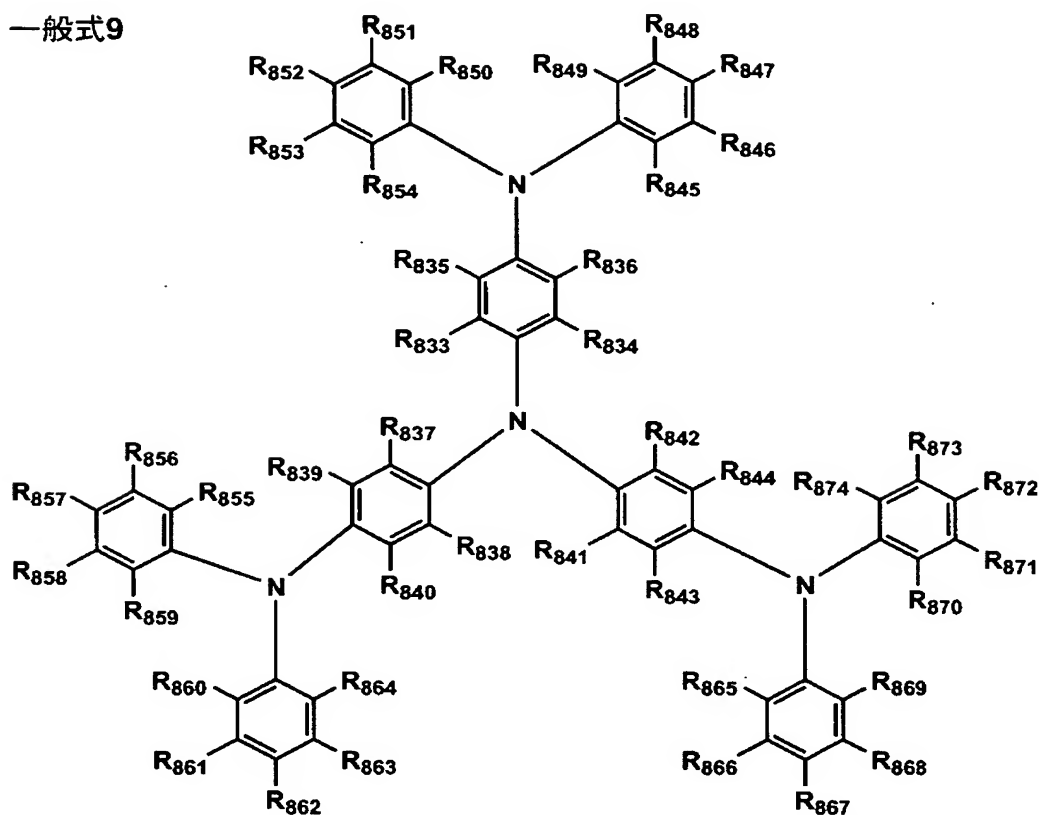


(式中、 $\text{X}_5 \sim \text{X}_6$ は、各々独立に、N、もしくは $\text{C}-\text{R}_{501}$ を表わし、 $\text{R}_{501}$ は、水素原子、もしくは置換基を表す。 $\text{X}_5$ 、 $\text{X}_6$ の少なくとも一つは $\text{C}-\text{R}_{501}$ であり、 $\text{R}_{501}$ の少なくとも一つは置換基を表す。且つ $\text{X}_7$ 、 $\text{X}_8$ の少なくとも一つは $\text{C}-\text{R}_{501}$ であり、 $\text{R}_{501}$ の少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 2 5】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式 9 で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする請求項 1 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 14】

一般式9

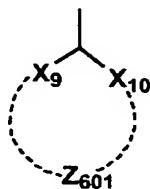


(式中、R<sub>833</sub>～R<sub>873</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、R<sub>833</sub>、R<sub>834</sub>のうちいずれかは置換基を表し、R<sub>835</sub>、R<sub>836</sub>のうちいずれかは置換基を表し、R<sub>837</sub>、R<sub>838</sub>のうちいずれかは置換基を表し、R<sub>839</sub>、R<sub>840</sub>のうちいずれかは置換基を表し、R<sub>841</sub>、R<sub>842</sub>のうちいずれかは置換基を表し、R<sub>843</sub>、R<sub>844</sub>のうちいずれかは置換基を表す。)

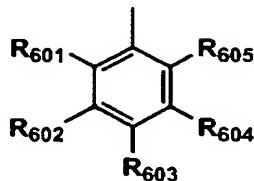
【請求項 26】 前記トリアリールアミン化合物は下記一般式 10-1、10-2、10-3、10-4 で表される末端基の少なくとも一つを有することを特徴とする請求項 18 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 15】

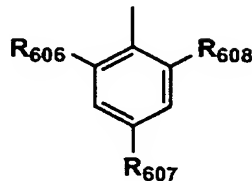
一般式 10-1



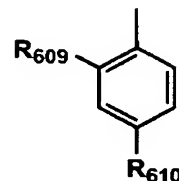
一般式 10-2



一般式 10-3



一般式 10-4

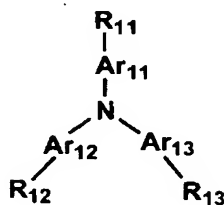


(式中、 $X_9$ 、 $X_{10}$ は、各々独立に、N、O、S、もしくはC-R<sub>611</sub>を表し、R<sub>611</sub>は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $X_9$ 、 $X_{10}$ の少なくとも一つはC-R<sub>611</sub>であり、このときR<sub>611</sub>は置換基である。Z<sub>601</sub>、芳香族炭素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。R<sub>601</sub>～R<sub>605</sub>は、各々独立に、水素原子、置換基を表し、R<sub>601</sub>、R<sub>605</sub>のうち少なくとも一つは置換基である。R<sub>606</sub>～R<sub>610</sub>は、各々独立に置換基を表す。)

【請求項 27】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式 1 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 16】

一般式 1



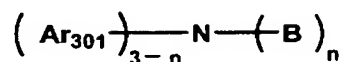
(式中、R<sub>11</sub>～R<sub>13</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 28】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式 2 で表されるトリアリールアミン化合物であるこ

とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 17】

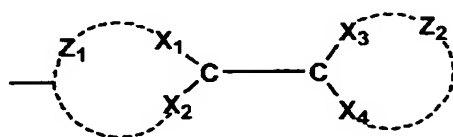
一般式2



(式中、Ar<sub>301</sub>は、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Bは下記一般式3を表し、nは1～3の整数を表す。)

【化 18】

一般式3

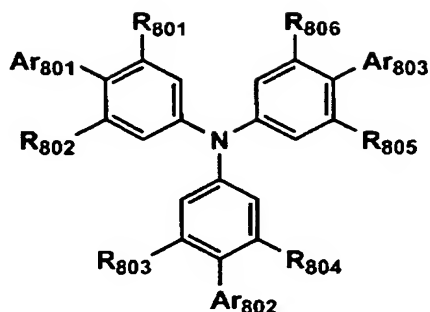


(式中、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>は、各々独立に、各々芳香族炭素環、もしくは芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、X<sub>1</sub>～X<sub>4</sub>は、各々独立に、C-R<sub>301</sub>、N、O、S、を表し、R<sub>301</sub>は、水素原子、若しくは置換基を表すが、X<sub>1</sub>～X<sub>4</sub>のうち少なくとも一つはC-R<sub>301</sub>を表し、そのときのR<sub>301</sub>は置換基を表す。)

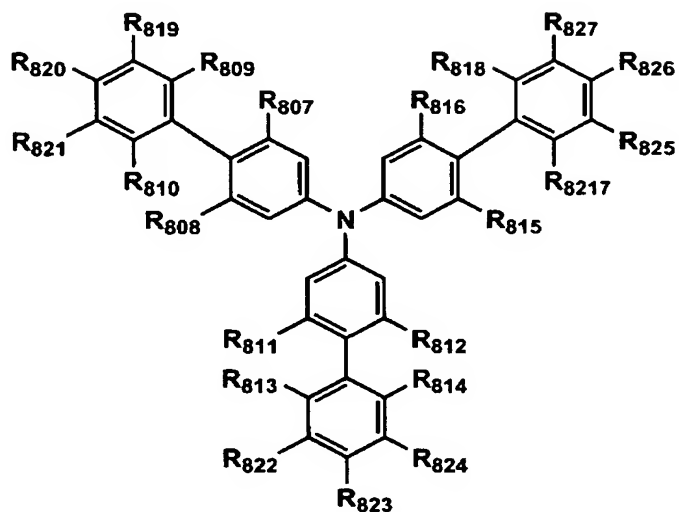
【請求項 29】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式4-1、4-2で表されるトリアリールアミン化合物の少なくとも一つであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化19】

一般式4-1



一般式4-2

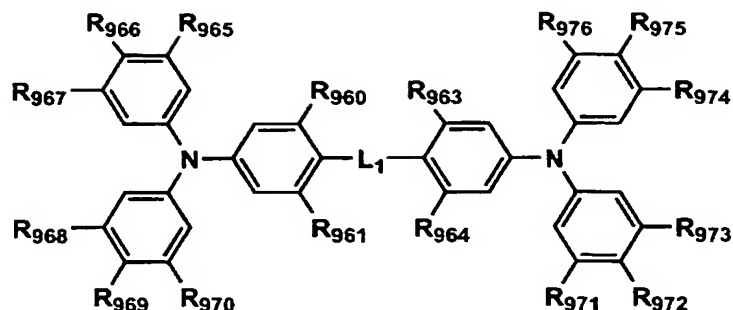


(式中、R801～R827は水素原子もしくは置換基を表す。但し、R801、R802のいずれかは置換基、R803、R804のいずれかは置換基、R805、R806のいずれかは置換基を表し、R807～R810のいずれかは置換基、R811～R814のいずれか一つは置換基、R815～R818のいずれかは置換基を表す。)

【請求項30】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式5で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 20】

## 一般式5

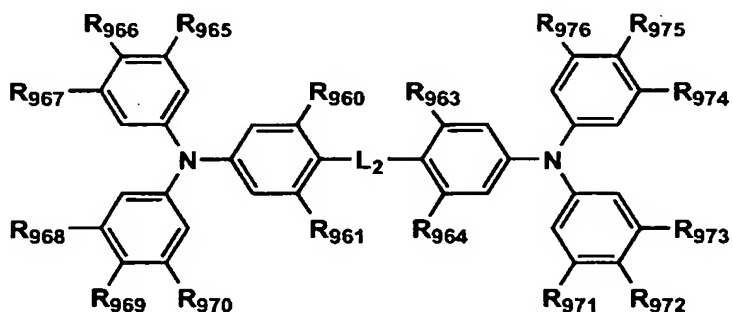


(式中、R960～R976は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、R960、R961のいずれかは置換基を表し、R963、R964のいずれかは置換基を表す。L<sub>1</sub>は、二価の連結基、もしくは直接結合を表す)

【請求項 31】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式6で表されるトリアリーールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 21】

## 一般式6



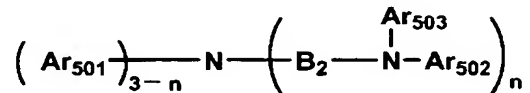
(式中、R960～R976は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。L<sub>2</sub>は二価のアルキル基、シクロアルキル基、もしくはフッ化アルキル基の連結基を表す。)

【請求項 32】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正

孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式 7 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 2 2】

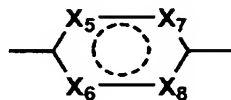
一般式 7



(式中、 $\text{B}_2$  は下記一般式 8 を表し、 $\text{Ar}_{501} \sim \text{Ar}_{503}$  は、各々独立に、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表す。 $n$  は 1 ～ 3 の整数を表す)

【化 2 3】

一般式 8

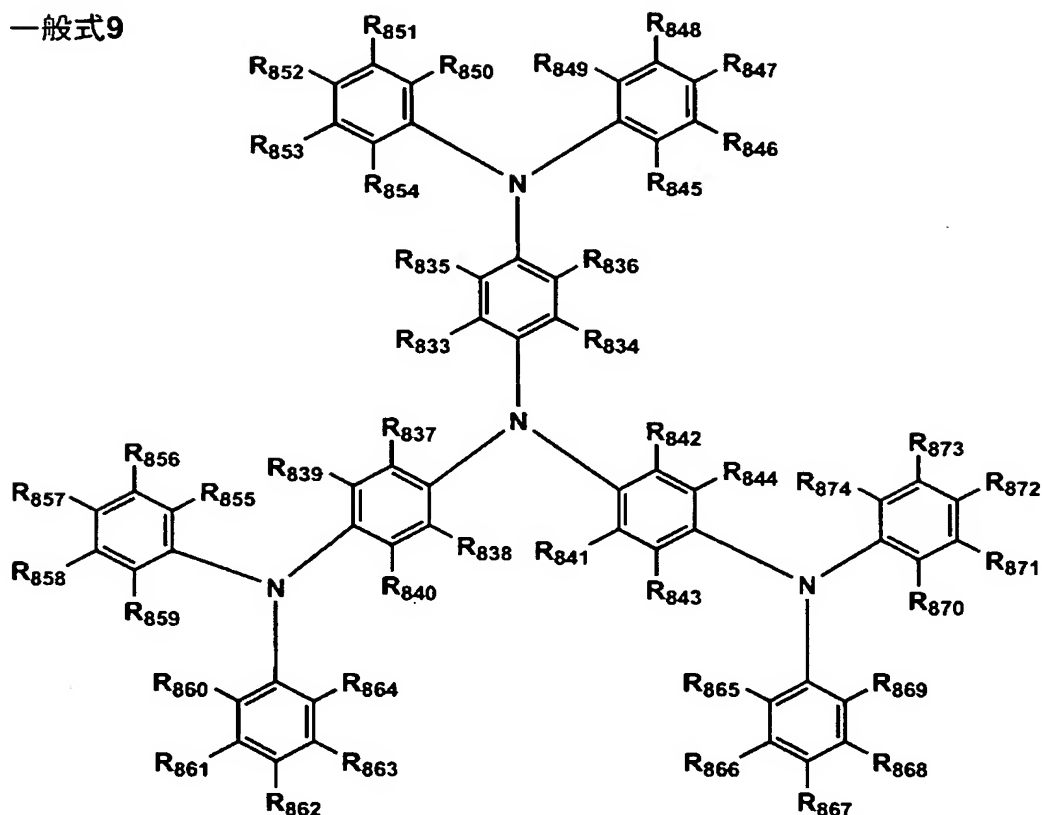


(式中、 $\text{X}_5 \sim \text{X}_6$  は、各々独立に、N、もしくは  $\text{C}-\text{R}_{501}$  を表わし、 $\text{R}_{501}$  は、水素原子、もしくは置換基を表す。 $\text{X}_5$ 、 $\text{X}_6$  の少なくとも一つは  $\text{C}-\text{R}_{501}$  であり、 $\text{R}_{501}$  の少なくとも一つは置換基を表す。且つ  $\text{X}_7$ 、 $\text{X}_8$  の少なくとも一つは  $\text{C}-\text{R}_{501}$  であり、 $\text{R}_{501}$  の少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 33】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式 9 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 2 4】

一般式9



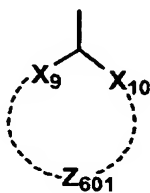
(式中、R833～R873は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、R833、R834のうちいずれかは置換基を表し、R835、R836のうちいずれかは置換基を表し、R837、R838のうちいずれかは置換基を表し、R839、R840のうちいずれかは置換基を表し、R841、R842のうちいずれかは置換基を表し、R843、R844のうちいずれかは置換基を表す。)

【請求項 3 4】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は下記一般式 10-1、10-2、10-3、10-4 で表される末端基の少なくとも一つを有するトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

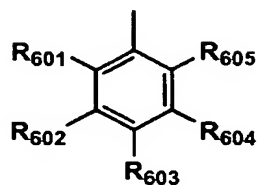


## 【化 25】

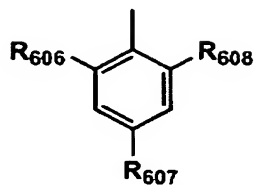
一般式 10-1



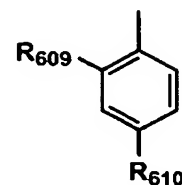
一般式 10-2



一般式 10-3



一般式 10-4



(式中、 $X_9$ 、 $X_{10}$ は、各々独立に、N、O、S、もしくはC-R<sub>611</sub>を表し、R<sub>611</sub>は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $X_9$ 、 $X_{10}$ の少なくとも一つはC-R<sub>611</sub>であり、このときR<sub>611</sub>は置換基である。Z<sub>601</sub>、芳香族炭素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。R<sub>601</sub>～R<sub>605</sub>は、各々独立に、水素原子、置換基を表し、R<sub>601</sub>、R<sub>605</sub>のうち少なくとも一つは置換基である。R<sub>606</sub>～R<sub>610</sub>は、各々独立に置換基を表す。)

【請求項 35】 前記正孔輸送材料の分子量が550以上であることを特徴とする請求項 27～34 のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 36】 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルI<sub>p1</sub>が5.0～5.70 eVであることを特徴とする請求項 27～35 のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 37】 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルI<sub>p1</sub>とリン光性化合物のイオン化ポテンシャルI<sub>p3</sub>とが下式を満たすことを特徴とする請求項 27～36 のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$-0.1 \leq I_{p3} - I_{p1} \leq 0.5$$

【請求項 38】 前記正孔輸送材料の電子親和力E<sub>a1</sub>と前記リン光性化合物の励起三重項準位T<sub>3</sub>とが下式を満たすことを特徴とする請求項 27～37 のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.5 < T_3 - E_{a1} < 1.3$$

【請求項 39】 前記リン光性化合物が380～480 nmにリン光発光極大波長を有する請求項 27～38 のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネ

ッセンス素子。

【請求項 40】 前記正孔輸送層に隣接し、前記発光層とは反対側にさらに正孔輸送層を有し、該正孔輸送層に含有される正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p4}$  と前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  との差が  $0.1 \sim 0.7$  である請求項 27～39 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$$

【請求項 41】 前記発光層に隣接する正孔輸送層の膜厚が  $5 \sim 20 \text{ nm}$  であることを特徴とする請求項 40 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 42】 前記発光層にさらにホスト化合物を含有することを特徴とする請求項 27～41 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 43】 前記正孔輸送層のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と前記ホスト化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p2}$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 27～42 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.3 < I_{p2} - I_{p1} < 1.0$$

【請求項 44】 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記ホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが下式を満たすことを特徴とする請求項 27～43 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < E_{a2} - E_{a1} < 0.8$$

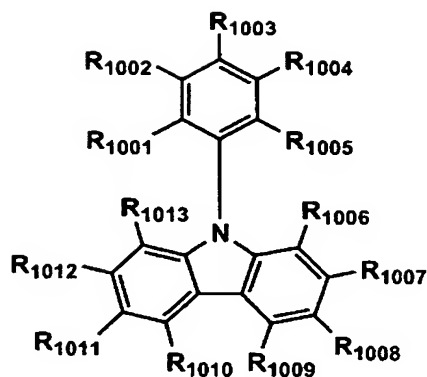
【請求項 45】 前記ホスト化合物のリン光発光波長が  $300 \sim 450 \text{ nm}$  であることを特徴とする請求項 27～44 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 46】 前記ホスト化合物はカルバゾール誘導体であることを特徴とする請求項 27～45 のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 47】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 11 で表される化合物であることを特徴とする請求項 46 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 2 6】

## 一般式11

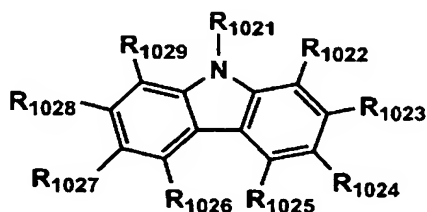


(式中、R1001～R1013は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 4 8】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 2 で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 2 7】

## 一般式12



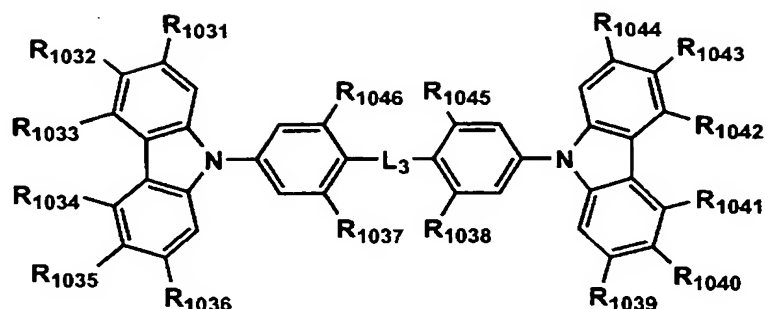
(式中、R1021は、アルキル基、シクロアルキル基、もしくはフッ化アルキル基を表し、R1022～R1029は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。)

【請求項 4 9】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 3 で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

子。

【化 2 8】

一般式 13

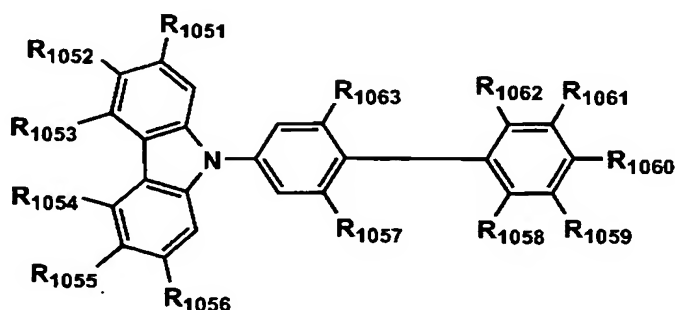


(式中、R 1031～R 1046は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表し、L<sub>3</sub>は2価の連結基、もしくは直接結合を表すが、直接結合の場合はR 1037、R 1038、R 1045、R 1046のうちいずれかは置換基を表す。)

【請求項 5 0】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 4 で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 2 9】

一般式 14



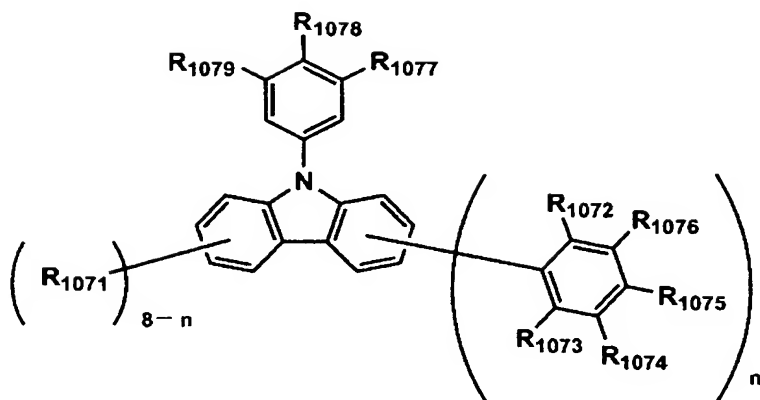
(式中、R 1051～R 1063は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R 1057、R 1058、R 1062、R 1063のいずれかは置換基を表す。)

【請求項 5 1】 前記カルバゾール誘導体は下記一般式 1 5 で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

子。

【化 30】

一般式15



(式中、R1071～R1079は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R1072、R1073のいずれかは置換基を表す。nは、1～8の整数を表す。)

【請求項52】 前記正孔輸送層を蒸着で形成したことを特徴とする請求項1～51のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項53】 前記正孔輸送層をウェットプロセスで形成したことを特徴とする請求項1～51のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項54】 請求項1～53のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた表示装置。

【請求項55】 請求項1～53のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

【請求項56】 請求項55に記載の照明装置と、表示手段としての液晶素子とを具備することを特徴とする表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、表示装置に関し、

詳しくは発光輝度、発光効率及び耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置、及びそれらを有する表示装置に関する。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ（ELD）がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子ともいう）が挙げられる。

#### 【0003】

無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

#### 【0004】

一方、有機EL素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・リン光）を利用して発光する素子であり、数V～数十V程度の電圧で発光が可能であり、さらに、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

#### 【0005】

今後の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、さらに低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体またはトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドーピングし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術（例えば、特許文献1参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これに微量の蛍光体をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献2参照。）、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドーピングした有機発光層を有する素子（例えば、特許文献3参照。）等が知られている。

## 【0006】

上記特許文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率 ( $\eta_{ext}$ ) の限界は5%とされている。

## 【0007】

ところが、プリンストン大より、励起三重項からのリン光発光を用いる有機EL素子の報告 (例えば、非特許文献1参照。) がされて以来、室温でリン光を示す材料の研究が活発になってきている (例えば、非特許文献2 及び特許文献4 参照。 ) 。

## 【0008】

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

## 【0009】

例えば、多くの化合物がイリジウム錯体系等重金属錯体を中心に合成検討されている (例えば、非特許文献3 参照。 ) 。

## 【0010】

また、ドーパントとして、トリス (2-フェニルピリジン) イリジウムを用いた検討がされている (例えば、非特許文献2 参照。 ) 。

## 【0011】

その他、ドーパントとして  $L_2Ir(acac)$ 、例えば  $(ppy)_2Ir(acac)$  (例えば、非特許文献4 参照。 ) を、また、ドーパントとして、トリス (2-(p-トリル) ピリジン) イリジウム ( $Ir(ptpy)_3$ )、トリス (ベンゾ [h] キノリン) イリジウム ( $Ir(bzq)_3$ )、 $Ir(bzq)_2ClP(Bu)_3$  等を用いた検討 (例えば、非特許文献5 参照。 ) が行われている。

## 【0012】

また、高い発光効率を得るために、ホール輸送性の化合物をリン光性化合物のホストとして用いている (例えば、非特許文献6 参照。 ) 。

## 【0013】

また、各種電子輸送性材料をリン光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーピングして用いている（例えば、非特許文献4参照）。さらに、ホールブロック層の導入により高い発光効率を得ている（例えば、非特許文献5参照。）。

## 【0014】

現在、このリン光発光を用いた有機EL素子の更なる発光の高効率化、長寿命化が検討されている。

## 【0015】

しかし、緑色発光については理論限界である20%近くの外部取り出し効率が達成されているものの、低電流領域（低輝度領域）のみであり、高電流領域（高輝度領域）では、いまだ理論限界は達成されていない。さらに、その他の発光色についてもまだ十分な効率が得られておらず改良が必要であり、また、今後の実用化に向けた有機EL素子では、更に、低消費電力で効率よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。特に青色リン光発光の有機EL素子において高効率に発光する素子が求められている。

## 【0016】

従来のリン光発光を用いた有機EL素子の正孔輸送材料としては、 $\alpha$ -NPD、m-MTDATA、TPD、hm-TPDや高分子系で用いられるPEDOT、PVKが用いられている。

## 【0017】

最も一般的である $\alpha$ -NPDは、発光層に正孔を注入しやすいが、励起3重項エネルギーは小さく、緑色のリン光発光有機EL素子の正孔輸送材料としては十分な性能を有しておらず、当然青色のりん光発光有機EL素子の正孔輸送材料としても十分な性能を有していない。

## 【0018】

m-MTDATAは正孔を注入しやすく、励起3重項エネルギーも比較的大きいが、青色のリン光発光有機EL素子としては十分な性能を有していない。

## 【0019】



TPD、hm-TPD（文献）も同様に青色リン光素子には不適であり、更には寿命の面にも問題がある。

【 0 0 2 0 】

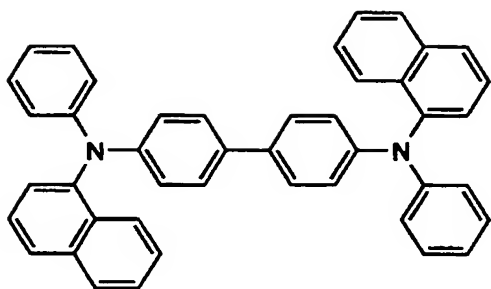
PEDOTは励起3重項エネルギーは非常に小さく、リン光発光有機EL素子の正孔輸送材料としては十分な性能を有していない。

【 0 0 2 1 】

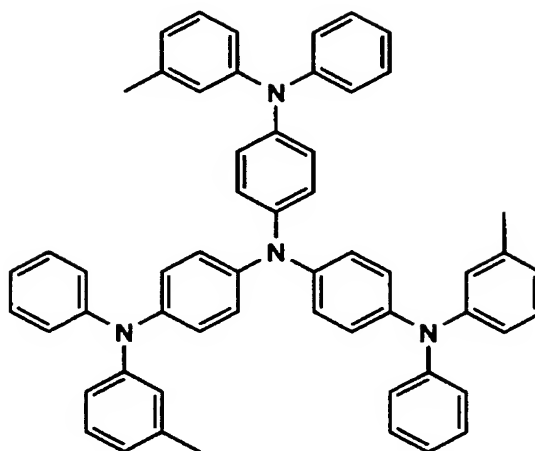
PVKは非常に励起3重項エネルギーが大きいため、非常に良好であるが、イオン化ポテンシャルが非常に大きく正孔輸送性という意味で非常に問題が残る（駆動電圧が高い）。

【 0 0 2 2 】

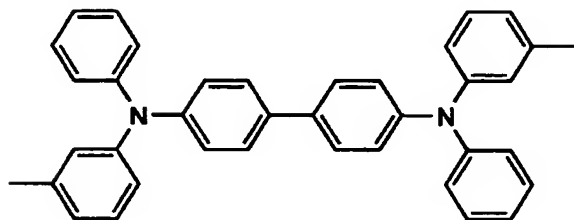
【化 3 1】

 $\alpha$ -NPD

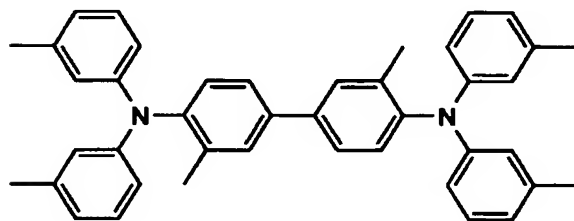
m-MTDATA



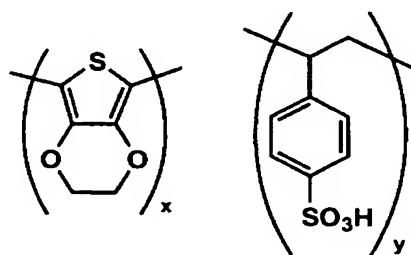
TPD



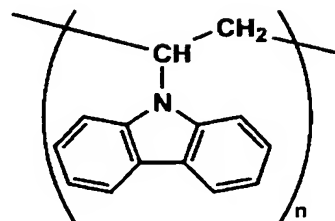
hm-TPD



PEDOT/PSS



PVK



【0023】

当然、これらの化合物を用いても、層構成を工夫することで（膜厚や両電荷の注入バランスの調整）、3重項励起子が正孔輸送層により、失活しないように工夫することはできるが、それは非常に困難であり、特に高電流領域（高輝度領域）ではほとんど不可能である。

**【0024】****【特許文献1】**

特許第3093796号明細書

**【0025】****【特許文献2】**

特開昭63-264692号公報

**【0026】****【特許文献3】**

特開平3-255190号公報

**【0027】****【特許文献4】**

米国特許第6,097,147号明細書

**【0028】****【非特許文献1】**

M. A. Baldo et al., nature、395巻、151-154ページ（1998年）

**【0029】****【非特許文献2】**

M. A. Baldo et al., nature、403巻、17号、750-753ページ（2000年）

**【0030】****【非特許文献3】**

S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ（2001年）

**【0031】**

## 【非特許文献4】

M. E. Thompson et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL' 00、浜松)

## 【0032】

## 【非特許文献5】

Moon-Jae Youn. Og, Tetsuo Tsutsui et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL' 00、浜松)

## 【0033】

## 【非特許文献6】

Ikai et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL' 00、浜松)

## 【0034】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は係る課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、発光効率が高い有機EL素子、照明装置および表示装置を提供することである。

## 【0035】

## 【課題を解決するための手段】

本発明の上記目的は下記構成により達成された。

## 【0036】

(1) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は、リン光スペクトルの0-0バンドが300～450nmであり、分子量

が550以上であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0037】

(2) 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  が5.00～5.70 eVであることを特徴とする(1)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0038】

(3) 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  とリン光性化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p3}$  とが下式を満たすことを特徴とする(1)又は(2)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$-0.1 \leq I_{p3} - I_{p1} \leq 0.5$$

(4) 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記リン光性化合物の励起三重項準位  $T3$  とが下式を満たすことを特徴とする(1)～(3)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.5 < T3 - E_{a1} < 1.3$$

(5) 前記リン光性化合物が380～480 nmにリン光発光極大波長を有することを特徴とする(1)～(4)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0039】

(6) 前記正孔輸送層に隣接し、前記発光層とは反対側にさらに正孔輸送層を有し、該正孔輸送層に含有される正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p4}$  と前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  との差が0.1～0.7であることを特徴とする(1)～(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$$

(7) 前記発光層に隣接する正孔輸送層の膜厚が5～20 nmであることを特徴とする(6)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0040】

(8) 前記発光層にさらにホスト化合物を含有することを特徴とする(1)～(7)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0041】

(9) 前記正孔輸送層のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と前記ホスト化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p2}$  とが下式を満たすことを特徴とする (8) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.3 < I_{p2} - I_{p1} < 1.0$$

(10) 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記ホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが下式を満たすことを特徴とする (8) 又は (9) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < E_{a2} - E_{a1} < 0.8$$

(11) 前記ホスト化合物のリン光発光波長が  $300 \sim 450 \text{ nm}$  であることを特徴とする (8) ~ (10) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0042】

(12) 前記ホスト化合物はカルバゾール誘導体であることを特徴とする (8) ~ (11) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0043】

(13) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式 11 で表される化合物であることを特徴とする (12) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0044】

(14) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式 12 で表される化合物であることを特徴とする (12) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0045】

(15) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式 13 で表される化合物であることを特徴とする (12) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0046】

(16) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式 14 で表される化合物であることを特徴とする (12) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0047】

(17) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式 15 で表される化合物である

ことを特徴とする(12)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0048】

(18) 前記正孔輸送材料はトリアリールアミン化合物であることを特徴とする(1)～(17)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0049】

(19) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式1で表される化合物であることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0050】

(20) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式2で表される化合物であることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0051】

(21) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式4-1、4-2で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0052】

(22) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式5で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0053】

(23) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式6で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0054】

(24) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式7で表される化合物の少なくとも一つであることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0055】

(25) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式9で表される化合物の

少なくとも一つであることを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0056】

(26) 前記トリアリールアミン化合物は前記一般式10-1、10-2、10-3、10-4で表される末端基の少なくとも一つを有することを特徴とする(18)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0057】

(27) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式1で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0058】

(28) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式2で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0059】

(29) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式4-1、4-2で表されるトリアリールアミン化合物の少なくとも一つであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0060】

(30) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式5で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0061】

(31) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸



送材料は前記一般式 6 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0062】

(32) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式 7 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0063】

(33) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式 9 で表されるトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0064】

(34) リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は前記一般式 10-1、10-2、10-3、10-4 で表される末端基の少なくとも一つを有するトリアリールアミン化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0065】

(35) 前記正孔輸送材料の分子量が 550 以上であることを特徴とする (27) ~ (34) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0066】

(36) 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  が 5.00 ~ 5.70 eV であることを特徴とする (27) ~ (35) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0067】

(37) 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  とリン光性化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p3}$  とが下式を満たすことを特徴とする (27) ~ (36) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$-0.1 \leq I_{p3} - I_{p1} \leq 0.5$$

(38) 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記リン光性化合物の励起三重項準位  $T_3$  とが下式を満たすことを特徴とする (27) ~ (37) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.5 < T_3 - E_{a1} < 1.3$$

(39) 前記リン光性化合物が 380 ~ 480 nm にリン光発光極大波長を有する (27) ~ (38) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0068】

(40) 前記正孔輸送層に隣接し、前記発光層とは反対側にさらに正孔輸送層を有し、該正孔輸送層に含有される正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p4}$  と前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  との差が 0.1 ~ 0.7 である (27) ~ (39) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$$

(41) 前記発光層に隣接する正孔輸送層の膜厚が 5 ~ 20 nm であることを特徴とする (40) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0069】

(42) 前記発光層にさらにホスト化合物を含有することを特徴とする (27) ~ (41) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0070】

(43) 前記正孔輸送層のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と前記ホスト化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p2}$  とが下式を満たすことを特徴とする (27) ~ (42) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.3 < I_{p2} - I_{p1} < 1.0$$

(44) 前記正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と前記ホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが下式を満たすことを特徴とする (27) ~ (43) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

$$0.1 < E_{a2} - E_{a1} < 0.8$$

(45) 前記ホスト化合物のリン光発光波長が300～450 nmであることを特徴とする(27)～(44)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0071】

(46) 前記ホスト化合物はカルバゾール誘導体であることを特徴とする(27)～(45)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0072】

(47) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式11で表される化合物であることを特徴とする(46)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0073】

(48) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式12で表される化合物であることを特徴とする(46)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0074】

(49) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式13で表される化合物であることを特徴とする(46)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0075】

(50) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式14で表される化合物であることを特徴とする(46)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0076】

(51) 前記カルバゾール誘導体は前記一般式15で表される化合物であることを特徴とする請求項46に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0077】

(52) 前記正孔輸送層を蒸着で形成したことを特徴とする(1)～(51)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0078】

(53) 前記正孔輸送層をウェットプロセスで形成したことを特徴とする(1)～(51)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0079】

(54) (1)～(53)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッ

センス素子を備えた表示装置。

【0080】

(55) (1)～(53)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

【0081】

(56) (55)に記載の照明装置と、表示手段としての液晶素子とを具備することを特徴とする表示装置。

【0082】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明者等は、鋭意検討の結果、リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、正孔輸送材料のリン光スペクトルの0-0バンドが300～450 nmであり、分子量が550以上であることにより、熱安定性が向上させ、発光効率を高めることができることを見出した。即ち、本発明者等は、有機EL素子の発光は発光層中の陰極側で電子-ホール（正孔）の再結合が行われているだけでなく、実際には発光層中の正孔輸送層側で行われている場合もあることを見出し、正孔輸送層にリン光スペクトルの0-0バンドが300～450 nmであり分子量が550以上である正孔輸送材料を用いることにより、発光層中の正孔輸送層側での電子-ホール（正孔）の再結合を効率よく行うことができ、発光効率を高め、熱安定性を向上させることができることを見出した。

【0083】

このように発光層に隣接する正孔輸送層にリン光スペクトルの0-0バンドが300～450 nmであり分子量が550以上である正孔輸送材料を用いることで、励起3重項エネルギーを大きくして3重項励起子を閉じこめることができることで発光効率を高め、さらに熱安定性を向上させることができる。特に高電流領域でのリン光発光や青色りん光発光素子などにおいては顕著な効果を得ることができる。

【0084】

リン光スペクトルの0-0バンドは以下の測定方法により求めることができる

。

## 【0085】

測定する化合物を、よく脱酸素されたエタノール／メタノール＝4／1（vol／vol）の混合溶媒に溶かし、リン光測定用セルに入れた後液体窒素温度 77 K で励起光を照射し、励起光照射後 100 ms での発光スペクトルを測定する。リン光は蛍光に比べ発光寿命が長いため、100 ms 後に残存する光はほぼリン光であると考えることができる。なお、リン光寿命が 100 ms より短い化合物に対しては遅延時間を短くして測定しても構わないが、蛍光と区別できなくなるほど遅延時間を短くしてしまうとリン光と蛍光が分離できないので問題となるため、その分離が可能な遅延時間を選択する必要がある。

## 【0086】

また、上記溶剤系で溶解できない化合物については、その化合物を溶解しうる任意の溶剤を使用してもよい（実質上、上記測定法ではリン光波長の溶媒効果はごくわずかなので問題ない）。

## 【0087】

次に 0-0 バンドの求め方であるが、本発明においては、上記測定法で得られたリン光スペクトルチャートのなかで最も短波長側に現れる発光極大波長をもって 0-0 バンドと定義する。

## 【0088】

リン光スペクトルは通常強度が弱いことが多いため、拡大するとノイズとピークの判別が難しくなるケースがある。このような場合には励起光照射直後の発光スペクトル（便宜上これを定常光スペクトルと言う）を拡大し、励起光照射後 100 ms 後の発光スペクトル（便宜上これをリン光スペクトルと言う）と重ね合わせリン光スペクトルに由来する定常光スペクトル部分からピーク波長を読みとることで決定することができる。また、リン光スペクトルをスムージング処理することでノイズとピークを分離しピーク波長を読みとることもできる。なお、スムージング処理としては、Savitzky & Golay の平滑化法等を適用することができる。

## 【0089】

本発明においては、このリン光スペクトルの 0-0 バンドが 300~450 nm であり、更に好ましくは 350~430 nm である。これによりより一層発光効率を高めることができる

このような正孔輸送材料としてはトリアリールアミン化合物が好ましい。

#### 【0090】

トリアリール化合物において、以下に示すトリアリールアミン化合物が好ましく、これによりより一層発光効率を向上させることができる。

#### 【0091】

まず、前記一般式 1 で表されるトリアリール化合物が挙げられる。

前記一般式 1 で、 $R_{11} \sim R_{13}$  は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。

#### 【0092】

本発明において、置換基には、アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、エチニル基、プロパルギル基等）、アリール基（例えば、フェニル基等）、ヘテロアリール基（例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジル基、ピリミジル基、ピラジル基、トリアジル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリル基、フタラジル基等）、ヘテロ環基（例えば、ピロリジル基、イミダゾリル基、モルホルル基、オキサゾリル基等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニル

チオ基、ナフチルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリアルオキシカルボニル基(例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルファモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等)、アミド基(例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバモイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等)、スルフィニル基(例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスル

フィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基(例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基(フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフチルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリフェニルシリル基、フェニルジエチルシリル基等)、等が挙げられる。

#### 【0093】

これらの置換基は、上記の置換基によってさらに置換されていてもよい。また、これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい置換基が挙げられるが、重要であるのは置換基だけで、リン光スペクトルの0-0バンドが450nmを越えるような励起3重項エネルギーの小さい置換基を有さないということである。例えばナフチル基はリン光スペクトルの0-0バンドが471nmであり置換基としては適当でない。

#### 【0094】

好ましい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、フッ化炭化水素基、アリール基、ヘテロアリール基である。

#### 【0095】

R<sub>11</sub>~R<sub>13</sub>が、置換基を有して良いアリール基、ヘテロアリール基で有る場合、アリール基、ヘテロアリール基とはアリール基(例えば、フェニル基等)、ヘテロアリール基(例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基、ピリダジル基、



ピリミジル基、ピラジル基、トリアジル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリル基、フタラジル基等)であるが、これらも同様にアリール基、ヘテロアリール基のみでリン光スペクトルの0-0バンドが450nm以上である基は適当ではない。

#### 【0096】

A<sub>r11</sub>~A<sub>r13</sub>は置換基を有して良いアリール基、ヘテロアリール基を表すが同様である。

#### 【0097】

また、R<sub>11</sub>~R<sub>13</sub>のアリール基、ヘテロアリール基と連結するA<sub>r11</sub>~A<sub>r13</sub>の二面角は50度以上であることが好ましい。これは、A<sub>r11</sub>~A<sub>r13</sub>やR<sub>11</sub>~R<sub>13</sub>に置換基を導入することで立体的に制御することができる。置換基を導入せず立体的な制御を行わない場合、二面角は50度以下になるのが一般的である。この様な状態では、共役長が延びることで、リン光スペクトルの0-0バンドが長波長化して励起3重項エネルギーが小さくなる傾向がある。

#### 【0098】

二面角とは、この化合物の分子軌道計算(例えばMOPAC、gaussian)により、基底状態において構造最適化し、直結する芳香環平面と直結される側の芳香環平面との角度を言う。

#### 【0099】

次に、前記一般式2で表される化合物が挙げられる。

前記一般式2で、A<sub>r301</sub>は、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Bは前記一般式3を表し、nは1~3の整数を表す。

#### 【0100】

前記一般式3で、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>は、各々独立に、各々芳香族炭素環、もしくは芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表し、X<sub>1</sub>~X<sub>4</sub>は、各々独立に、C-R<sub>301</sub>、N、O、S、を表し、R<sub>301</sub>は、水素原子、若しくは置換基を表すが、X<sub>1</sub>~X<sub>4</sub>のうち少なくとも一つはC-R<sub>301</sub>を表し、そのときのR<sub>301</sub>は置換基を表す。X<sub>1</sub>~X<sub>4</sub>のうち少なくとも一つはC-R<sub>301</sub>を表しのうちR<sub>301</sub>は置換基であることで、立体的に反発することで、二面角50度以上が達成される。

## 【0101】

次に、前記一般式 4-1、4-2 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 4-1、4-2 で、R<sub>801</sub>～R<sub>827</sub>は水素原子もしくは置換基を表す。但し、R<sub>801</sub>、R<sub>802</sub>のいずれかは置換基、R<sub>803</sub>、R<sub>804</sub>のいずれかは置換基、R<sub>805</sub>、R<sub>806</sub>のいずれかは置換基を表し、R<sub>807</sub>～R<sub>810</sub>のいずれかは置換基、R<sub>811</sub>～R<sub>814</sub>のいずれか一つは置換基、R<sub>815</sub>～R<sub>818</sub>のいずれかは置換基を表す。この様に置換基を有することで2面角50度以上を達成することができる。また、特に中心骨格はトリフェニルアミンが好ましく、更に連結するアリール基としても置換基を有しても良いフェニル基が好ましい。ここで、各々のフェニル基のm-位、p-位に置換基を有することが好ましい。この部分に置換基を有することで、より大きな励起3重項エネルギーを得られることができ、化合物の安定性も向上する。

## 【0102】

次に、前記一般式 5 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 5 で、R<sub>960</sub>～R<sub>976</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、R<sub>960</sub>、R<sub>961</sub>のいずれかは置換基を表し、R<sub>963</sub>、R<sub>964</sub>のいずれかは置換基を表す。L<sub>1</sub>は、二価の連結基、もしくは直接結合を表し、好ましくはアルキレン、シクロアルキレン、フッ化アルキレン、アリーレン、ヘテロアリーレンである。

## 【0103】

また、ここでも同様にトリフェニルアミンのo-位に置換基は必要なく更に連結するL<sub>1</sub>がアリーレンやヘテロアリーレンである場合、共役がつながってしまうため、R<sub>960</sub>～R<sub>964</sub>に立体的に制御するためにいずれかに置換基を有することが好ましい。

## 【0104】

次に、前記一般式 6 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 6 で、R<sub>960</sub>～R<sub>976</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。L<sub>2</sub>は二価のアルキル基、シクロアルキル基、フッ化アルキル基、の連結基を表すが、連結基として、非共役性の連結基を用いることで、立体的な制御の

ための置換基は必要としない。本発明ではこの様に、非共役性の連結基を使用することでも同様の効果が得られる。但し、やはりトリフェニルアミンの 2, 6 位に置換基を導入することは先にも述べた同様の理由で必要ない。

#### 【0105】

次に、前記一般式 7 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 7 で、 $B_2$  は前記一般式 8 を表し、 $A_{r501} \sim A_{r503}$  は、各々独立に、置換基を有して良いアリール基、もしくはヘテロアリール基を表す。 $n$  は 1 ～ 3 の整数を表す。

#### 【0106】

前記一般式 8 で、 $X_5 \sim X_6$  は、各々独立に、 $N$ 、もしくは  $C-R_{501}$  を表わし、 $R_{501}$  は、水素原子、もしくは置換基を表す。 $X_5$ 、 $X_6$  の少なくとも一つは  $C-R_{501}$  であり、 $R_{501}$  の少なくとも一つは置換基を表す。且つ  $X_7$ 、 $X_8$  の少なくとも一つは  $C-R_{501}$  であり、 $R_{501}$  の少なくとも一つは置換基を表す。このようなトリアリールアミン化合物は安定性が良くなり素子の耐久性も向上する。

#### 【0107】

次に、前記一般式 9 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 9 で、 $R_{833} \sim R_{873}$  は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。但し、 $R_{833}$ 、 $R_{834}$  のうちいずれかは置換基を表し、 $R_{835}$ 、 $R_{836}$  のうちいずれかは置換基を表し、 $R_{837}$ 、 $R_{838}$  のうちいずれかは置換基を表し、 $R_{839}$ 、 $R_{840}$  のうちいずれかは置換基を表し、 $R_{841}$ 、 $R_{842}$  のうちいずれかは置換基を表し、 $R_{843}$ 、 $R_{844}$  のうちいずれかは置換基を表す。

#### 【0108】

フェニレンジアミン骨格においてはフェニレンジアミンのフェニレン部分に立体障害のある置換基を導入することでリン光スペクトルの 0-0 バンドを短波長化（励起三重項エネルギーを大きく）することができる。トリフェニルアミンでは 2, 6 位以外に置換基を導入することが好ましいことは説明したが、フェニレンジアミン骨格においては、化合物の不安定性も緩和される。

#### 【0109】

また、トリアリールアミン化合物において、前記一般式 10-1、10-2、

10-3、10-4 で表される末端基を有するトリアリールアミン化合物が挙げられる。

【0110】

前記一般式 10-1、10-2、10-3、10-4 で、 $X_9$ 、 $X_{10}$  は、各々独立に、N、O、S、もしくは  $C-R_{611}$  を表し、 $R_{611}$  は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $X_9$ 、 $X_{10}$  の少なくとも一つは  $C-R_{611}$  であり、このとき  $R_{611}$  は置換基である。 $Z_{601}$ 、芳香族炭素環または芳香族複素環を形成するのに必要な原子群を表す。 $R_{601} \sim R_{605}$  は、各々独立に、水素原子、置換基を表し、 $R_{601}$ 、 $R_{605}$  のうち少なくとも一つは置換基である。 $R_{606} \sim R_{610}$  は、各々独立に置換基を表す。

【0111】

化合物の末端基のオルト、パラの配向は特にトリフェニルアミン誘導体、フェニレンジアミン誘導体においては、劣化しやすい部位である。この位置に置換基を導入することで、効果的に化合物の安定性を向上させることが可能である。特に、本発明では大きな励起3重項エネルギーを有する正孔輸送化合物が特徴であり、その様な化合物は当然、バンドギャップも広く、化合物の安定性は良いとは言えない。よって、この様な基を導入することで素子の耐久性という意味で、非常に効果的である。無置換トリフェニルアミンを用いても良いように思えるが実際は結晶化してしまうため、良好な結果は得られない。

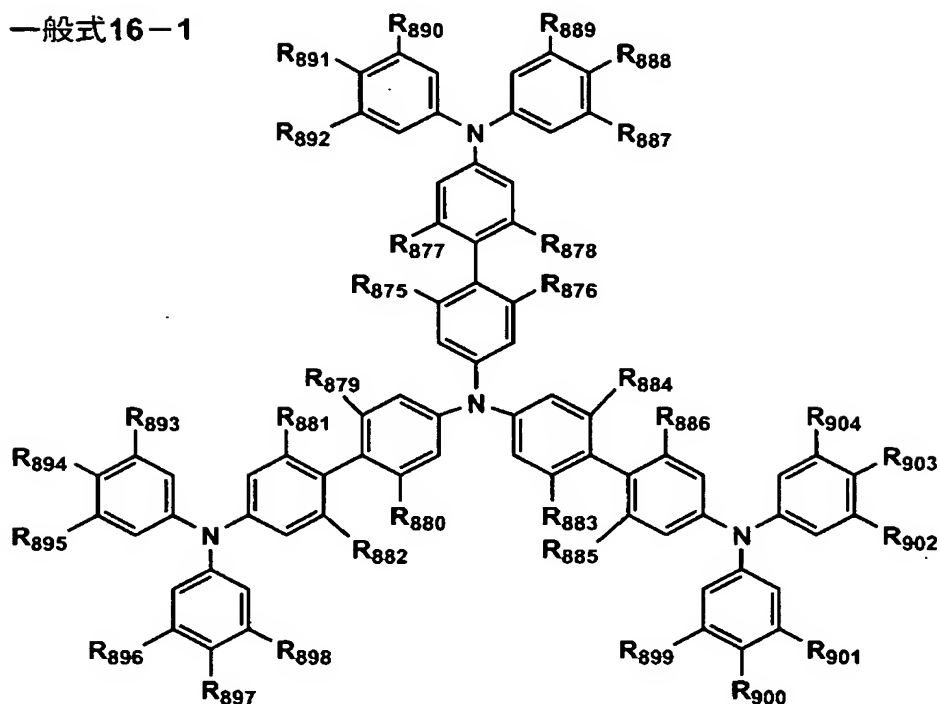
【0112】

次に、下記一般式 16-1、16-2 で表される化合物が挙げられる。

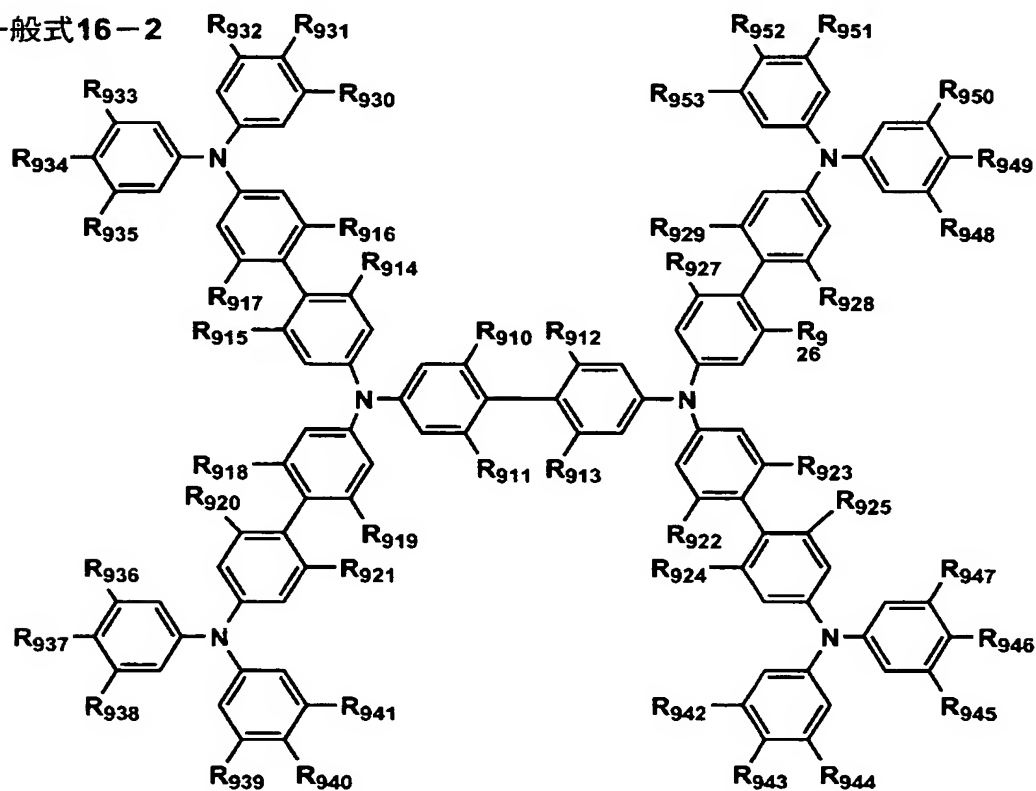
【0113】

## 【化 3 2】

一般式 16-1



一般式 16-2



【0114】

一般式 16-1、16-2 で、R875～R904 は水素原子もしくは置換基を表す

。但し、R<sub>875</sub>～R<sub>878</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>879</sub>～R<sub>882</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>883</sub>～R<sub>886</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表す。R<sub>910</sub>～R<sub>953</sub>は水素原子もしくは置換基を表す。但し、R<sub>910</sub>～R<sub>913</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>914</sub>～R<sub>917</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>918</sub>～R<sub>921</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>922</sub>～R<sub>925</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表し、R<sub>926</sub>～R<sub>929</sub>のうち少なくとも一つは置換基を表す。

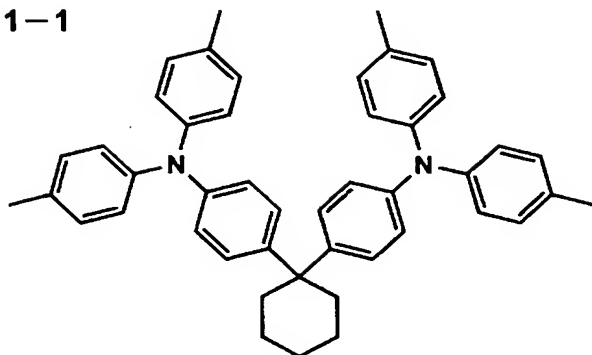
【0115】

以下に、トリアリールアミン化合物の化合物例を示すが、これらに限定されるものではない。

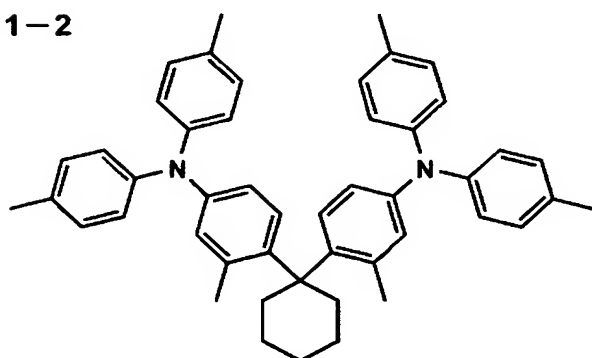
【0116】

【化 3 3】

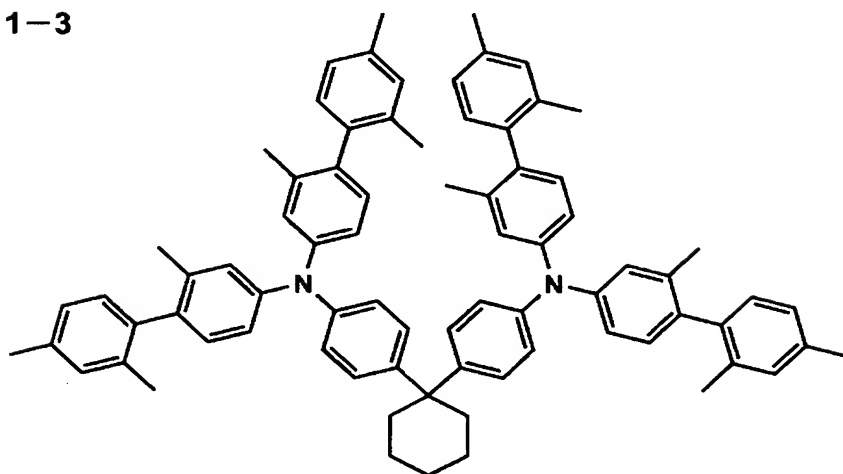
1-1



1-2

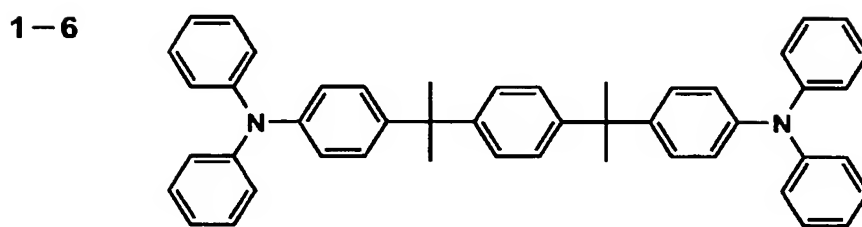
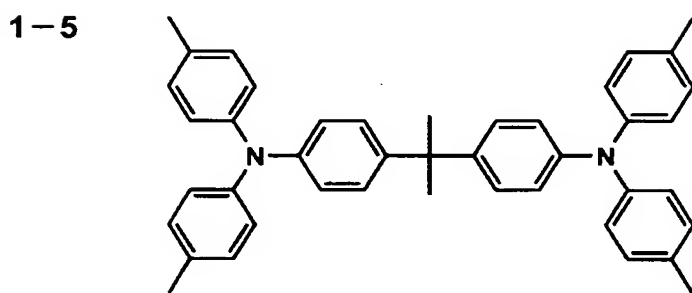
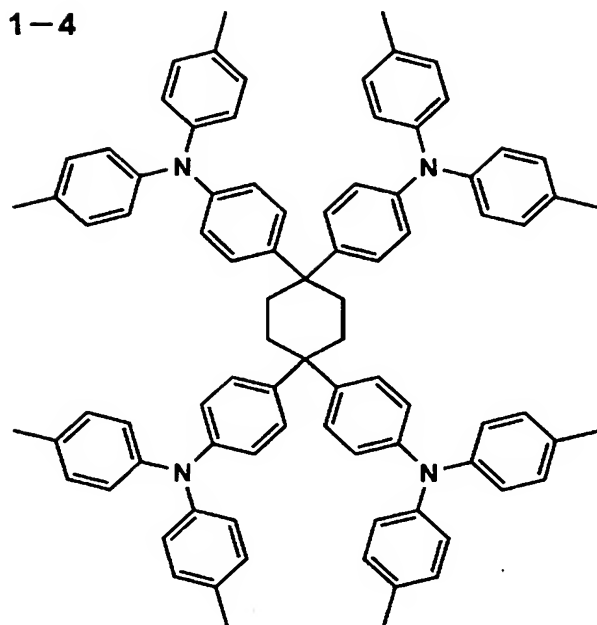


1-3



【0 1 1 7】

【化 3 4】

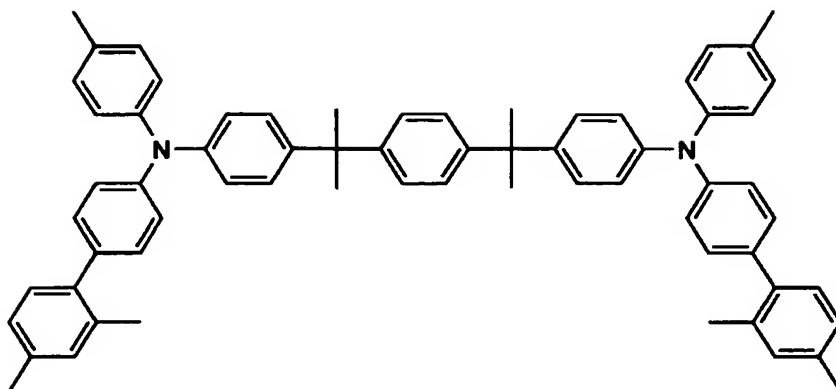


【0 1 1 8】

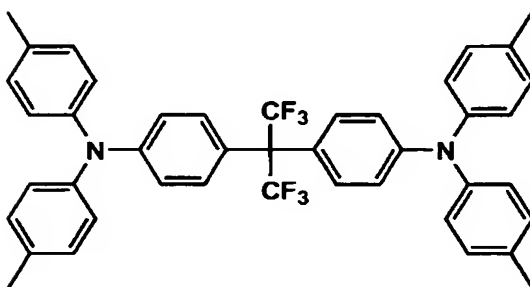


【化 3 5】

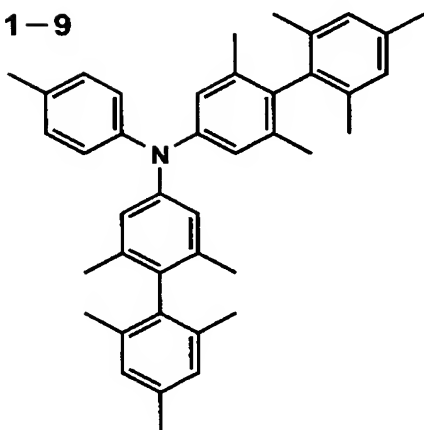
1-7



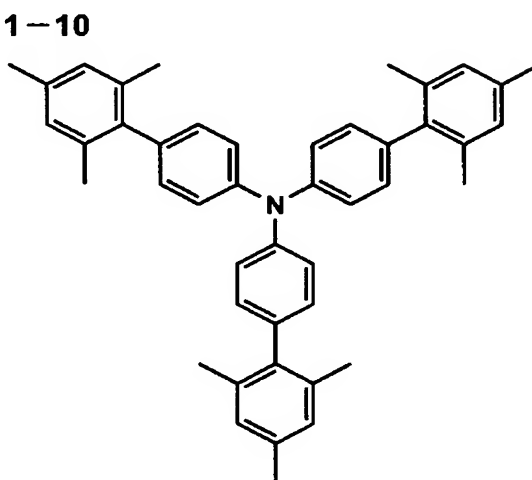
1-8



1-9



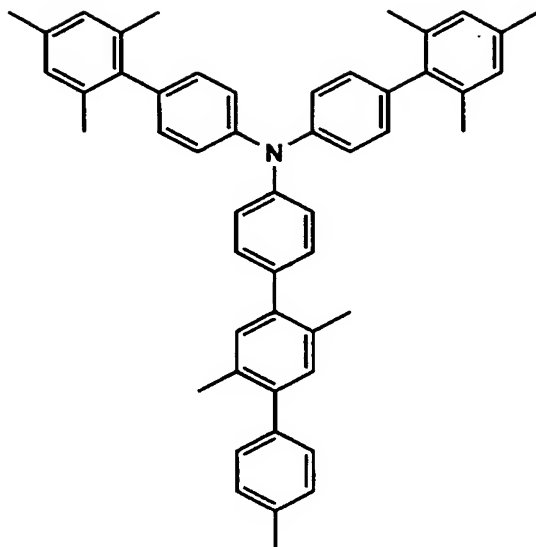
1-10



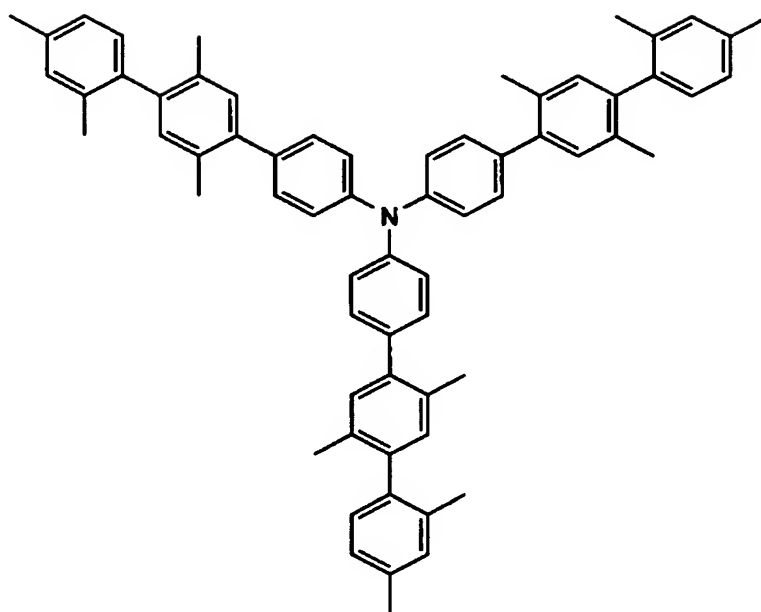
【0 1 1 9】

【化 3 6】

1-11



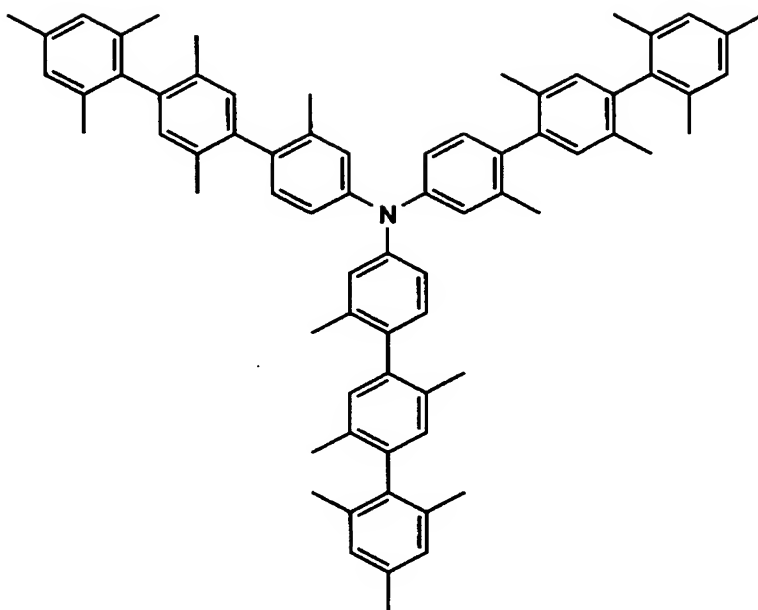
1-12



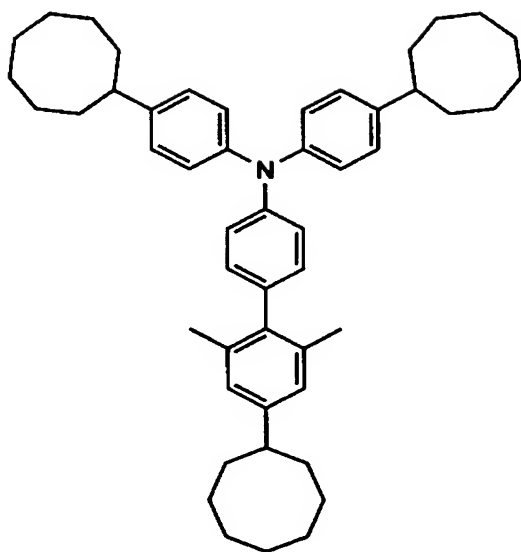
【0 1 2 0】

【化 3 7】

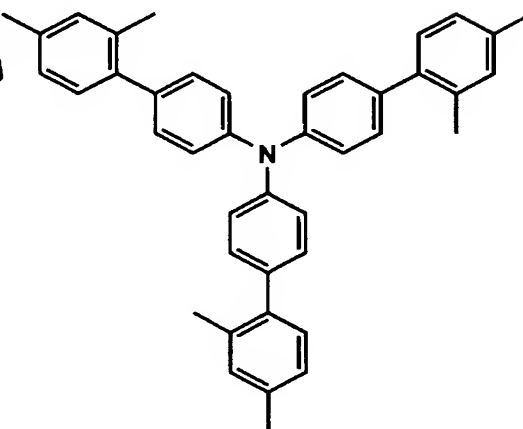
1-13



1-14



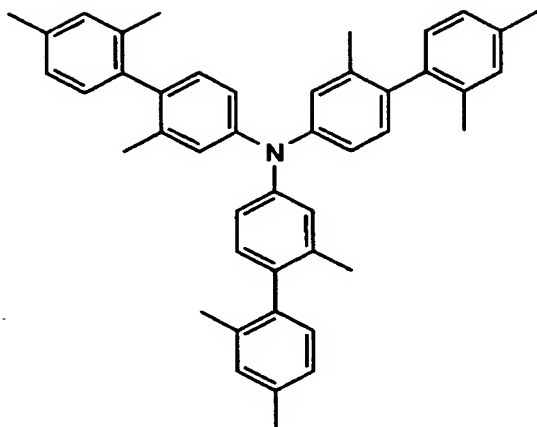
1-15



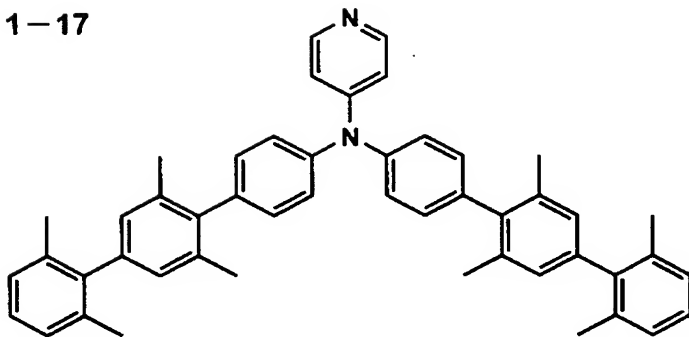
【0 1 2 1】

【化 38】

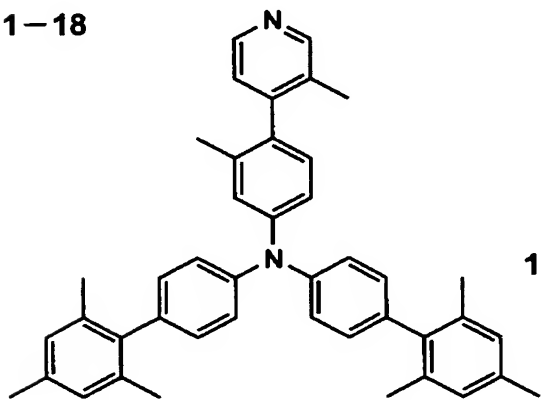
1-16



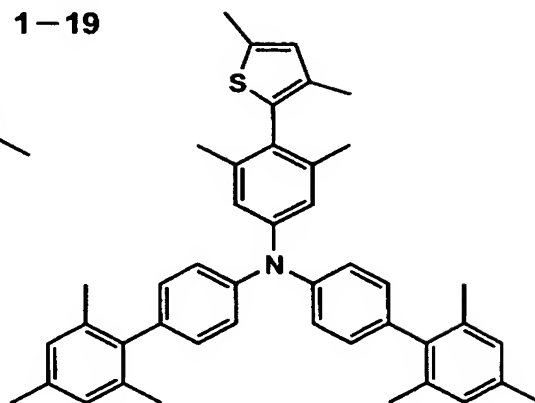
1-17



1-18



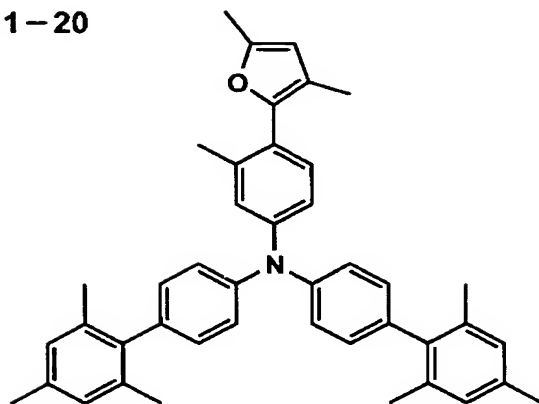
1-19



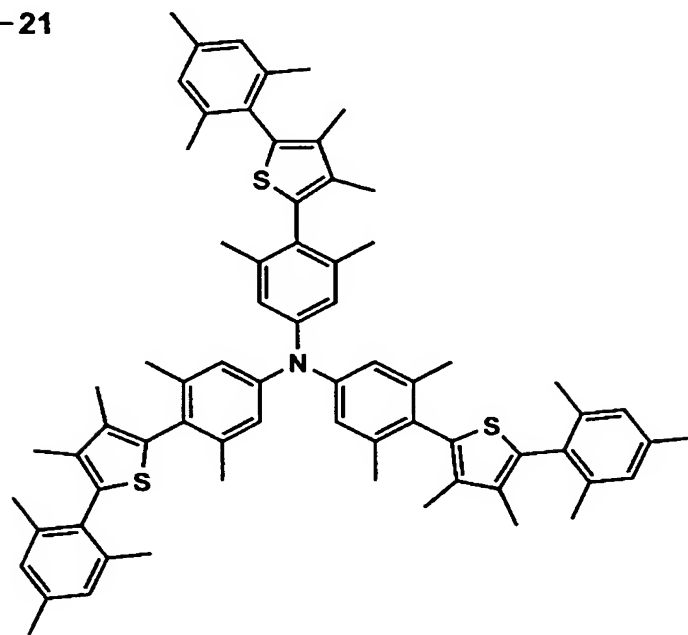
【0122】

【化 39】

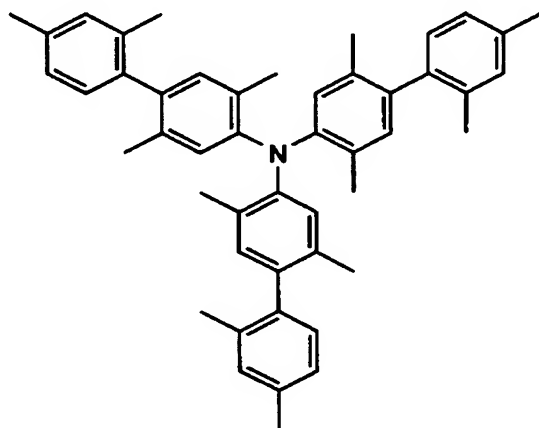
1-20



1-21



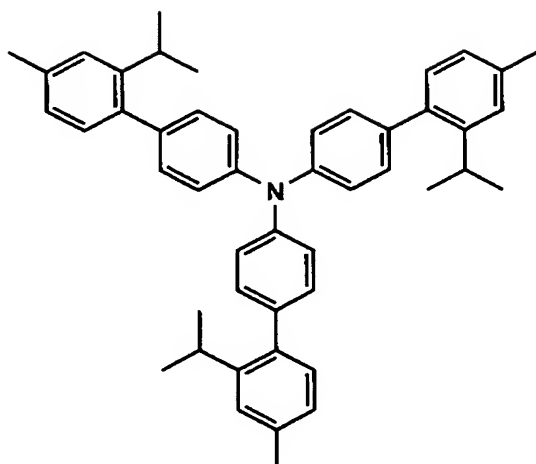
1-22



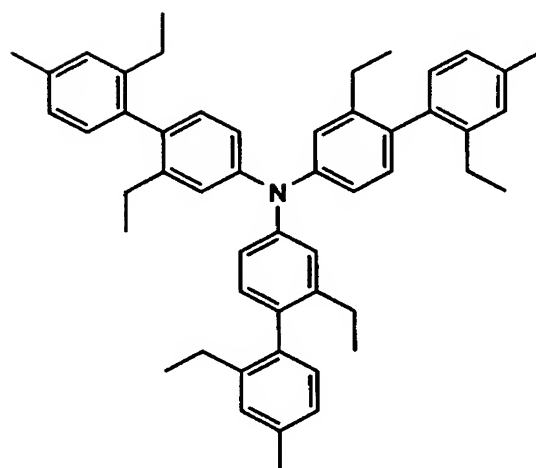
【0123】

【化 40】

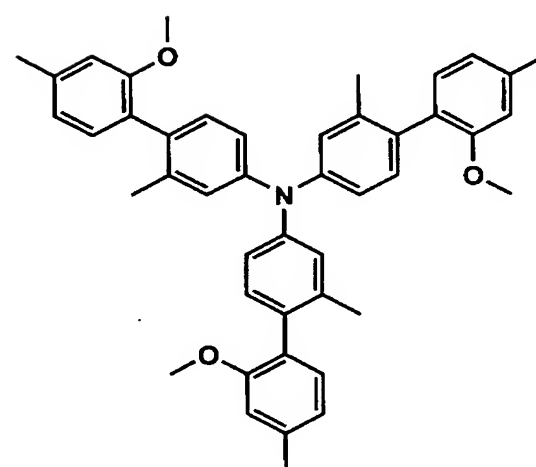
1-23



1-24

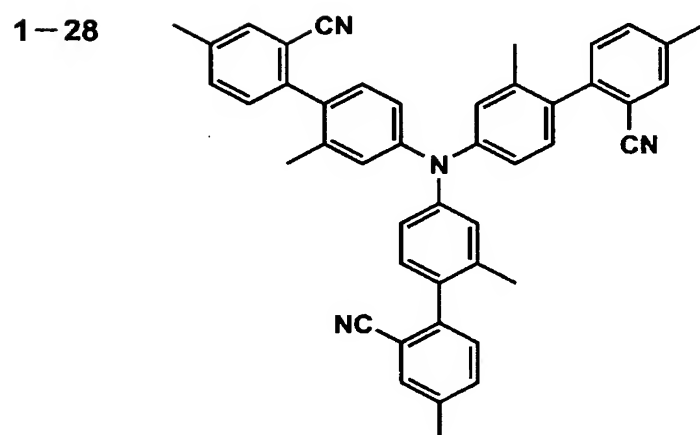
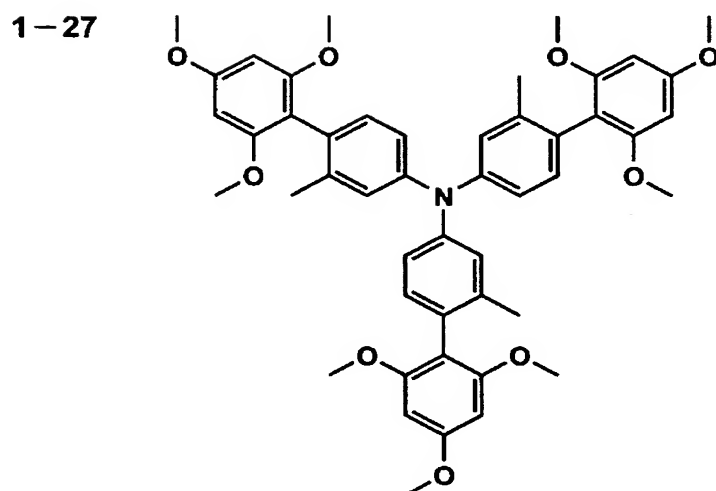
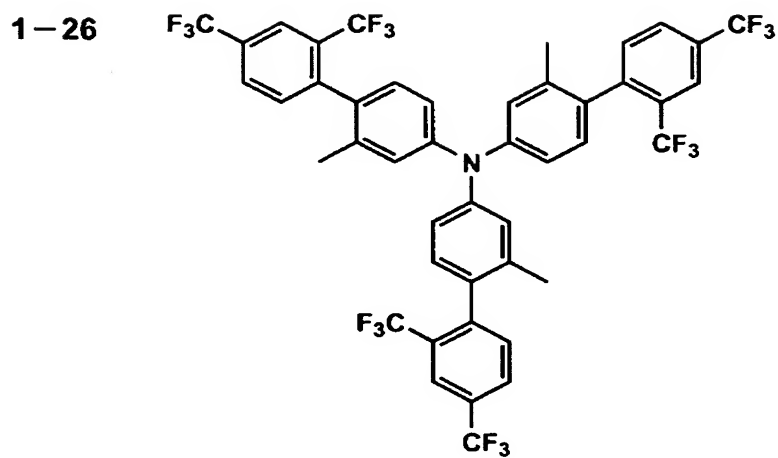


1-25



【0124】

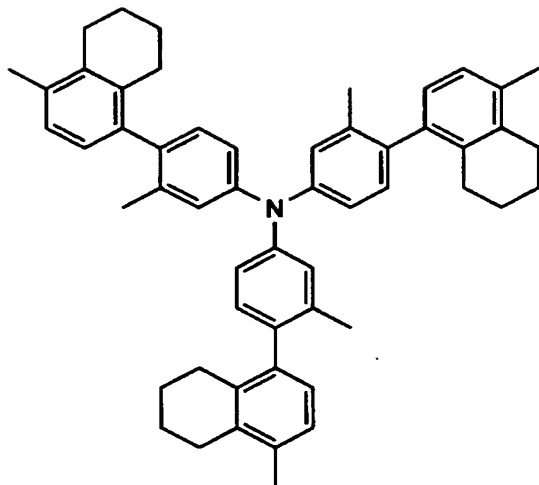
【化 4 1】



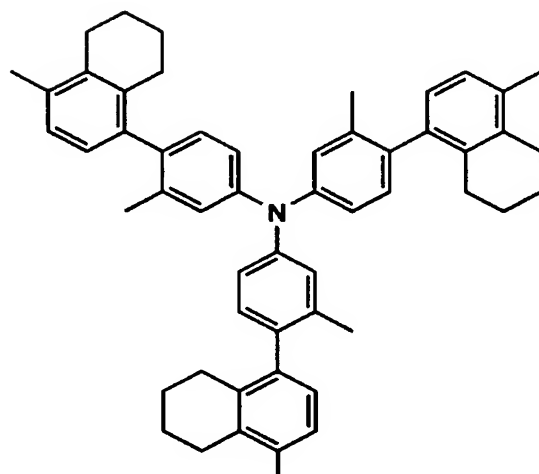
【0125】

【化 4 2】

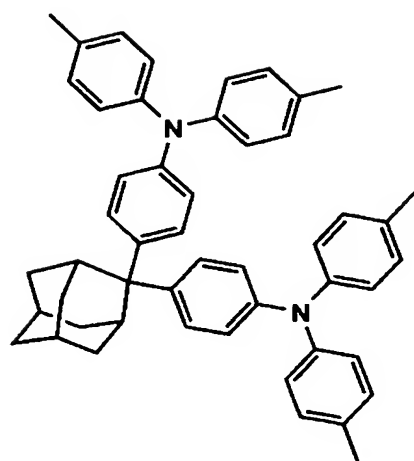
1-29



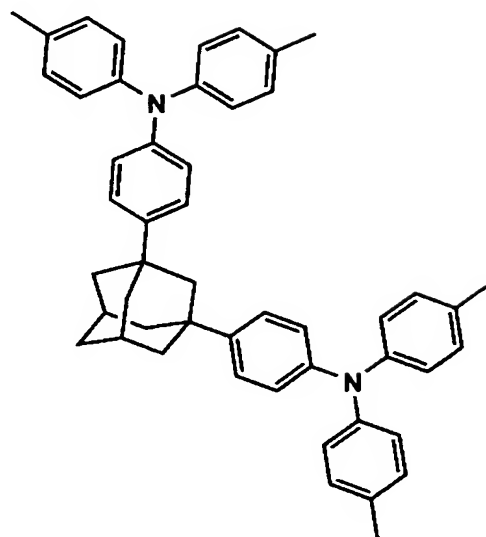
1-30



1-31



1-32

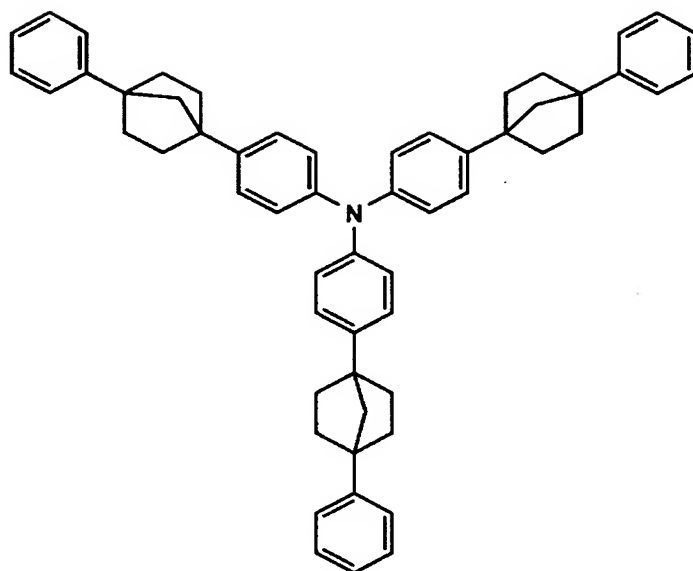


【0126】

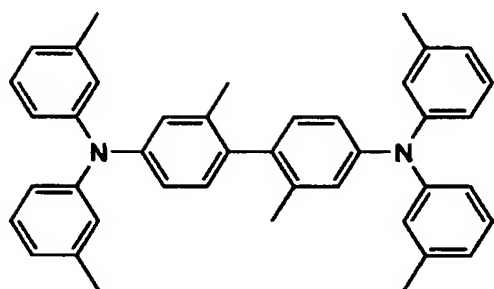


【化 4 3】

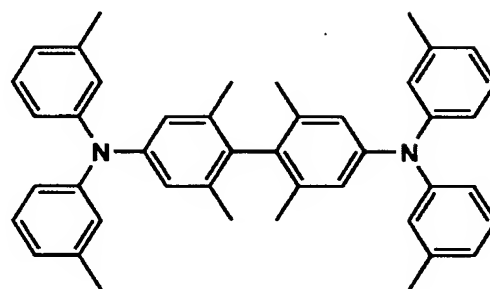
1-33



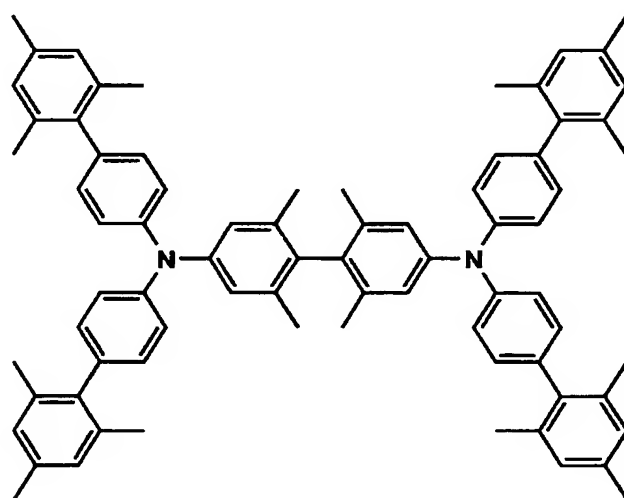
1-34



1-35



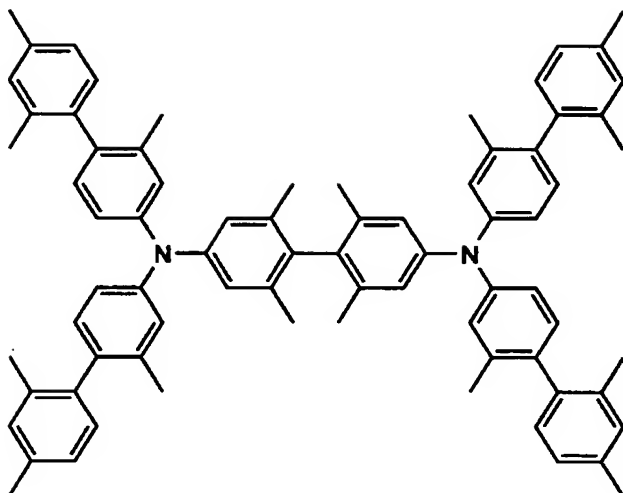
1-36



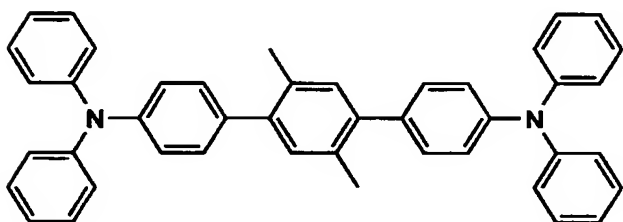
【0 1 2 7】

【化 4 4】

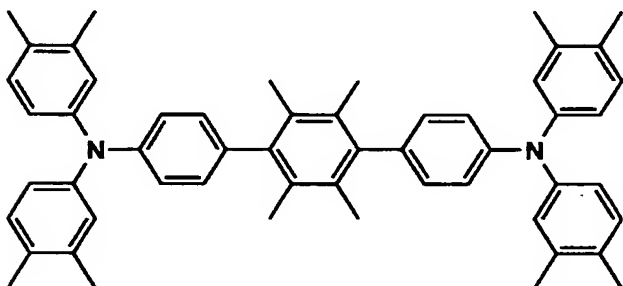
1-37



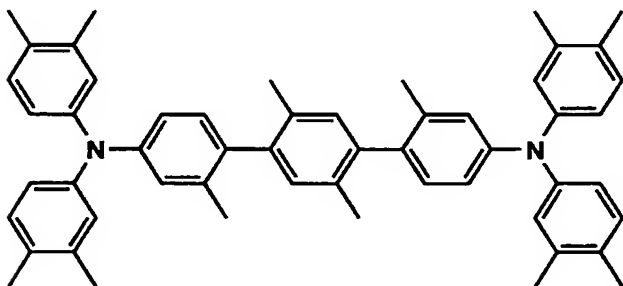
1-38



1-39



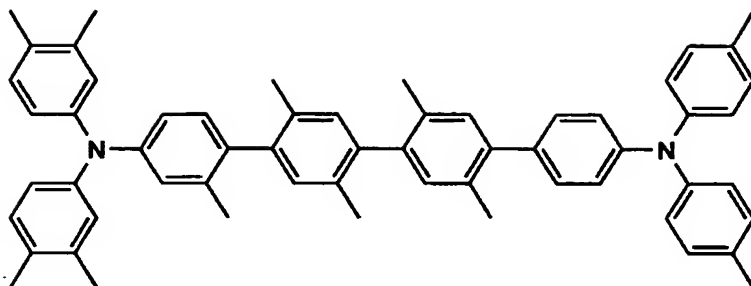
1-40



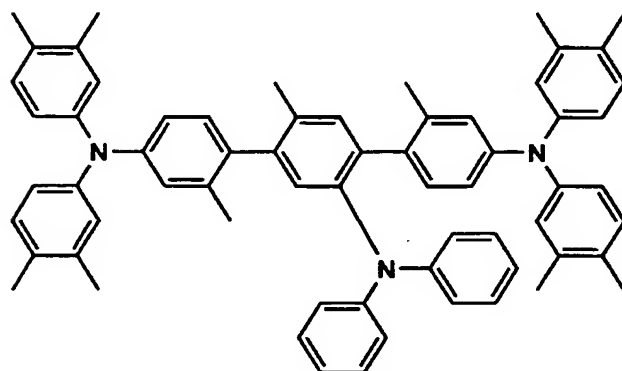
【0 1 2 8】

## 【化 45】

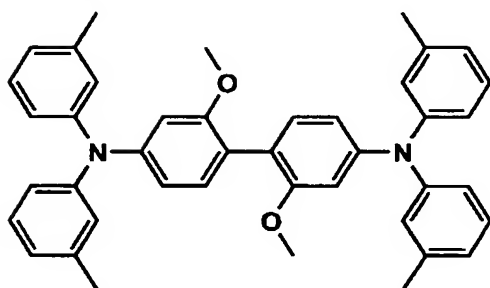
1-41



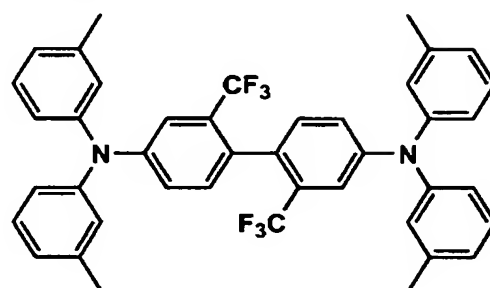
1-42



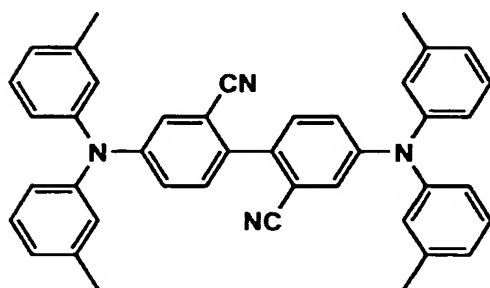
1-43



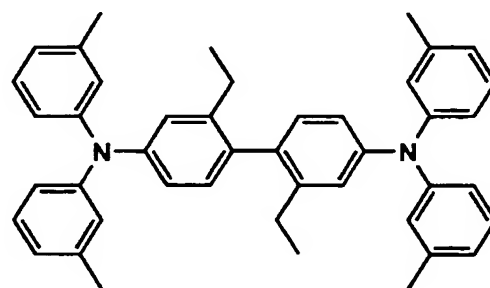
1-44



1-45



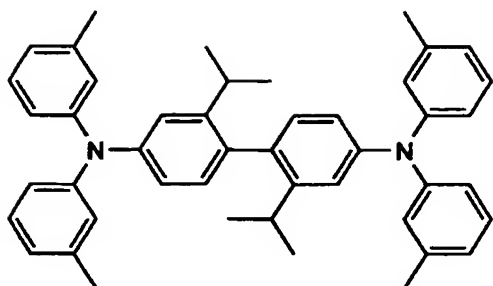
1-46



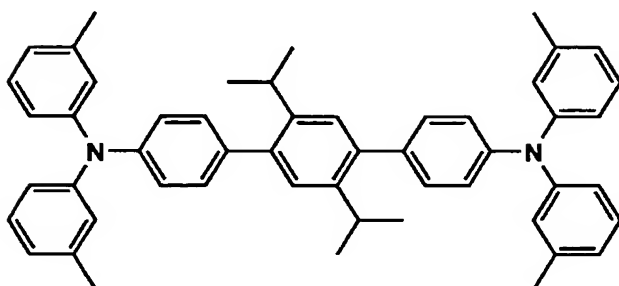
【0129】

【化 4 6】

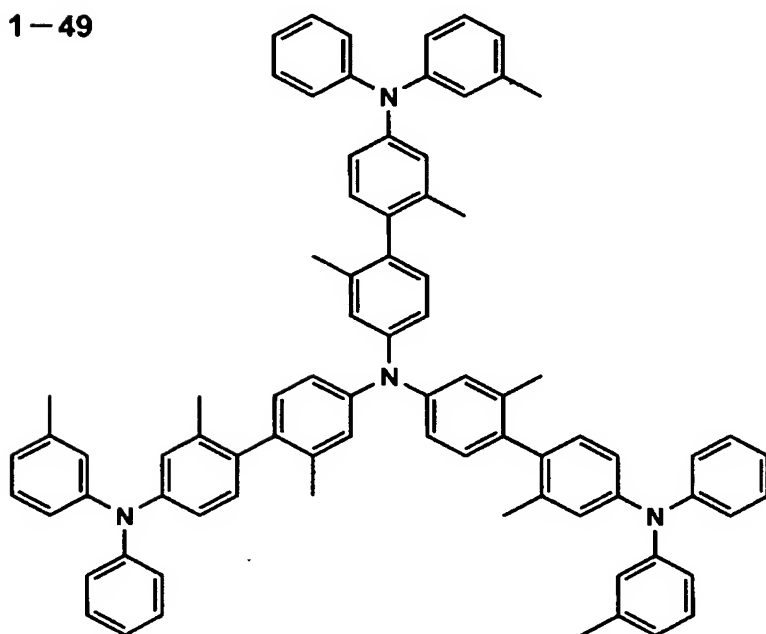
1-47



1-48



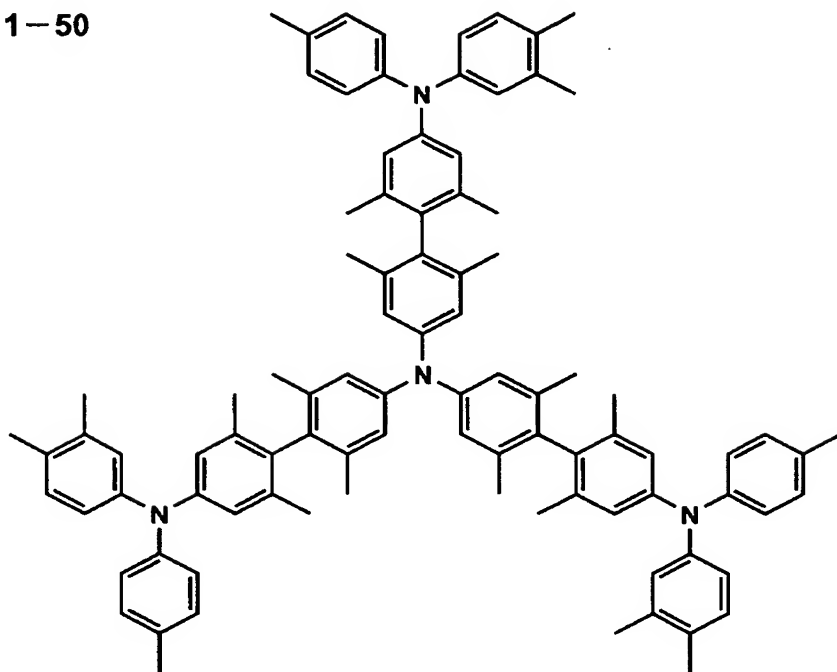
1-49



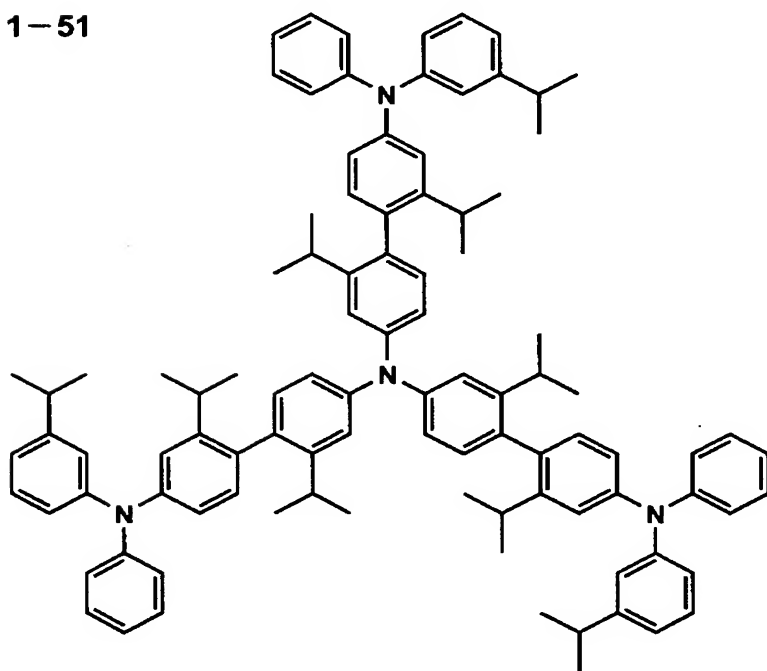
【0 1 3 0】

【化 4 7】

1-50



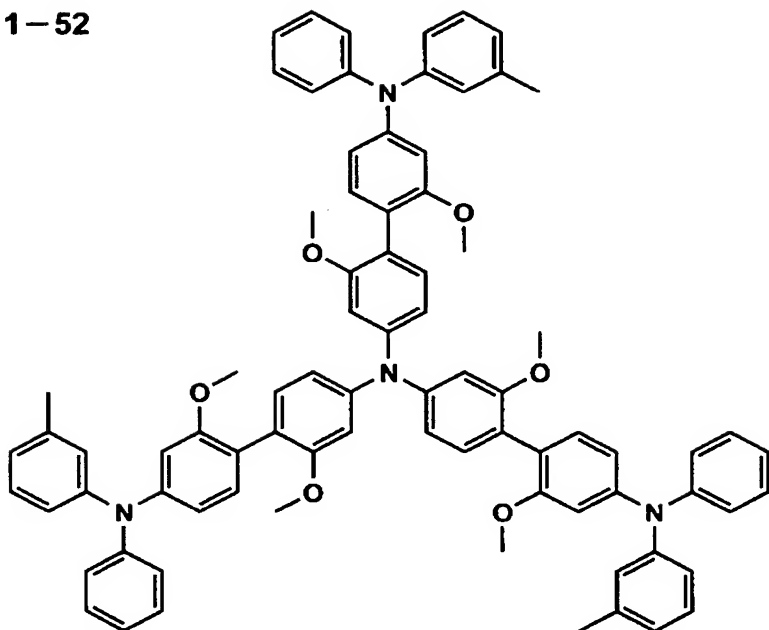
1-51



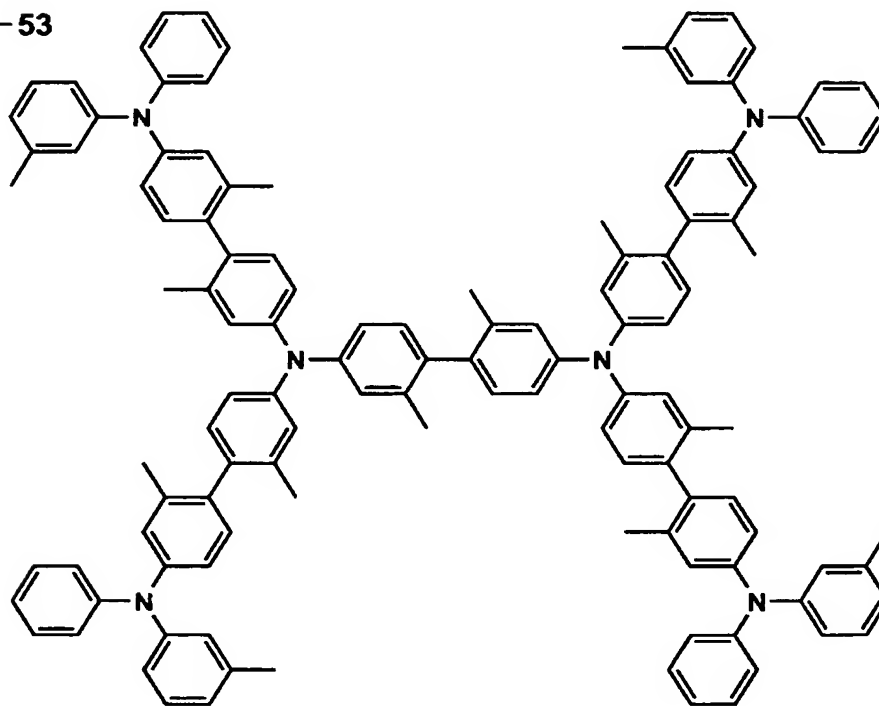
【0131】

【化 48】

1-52



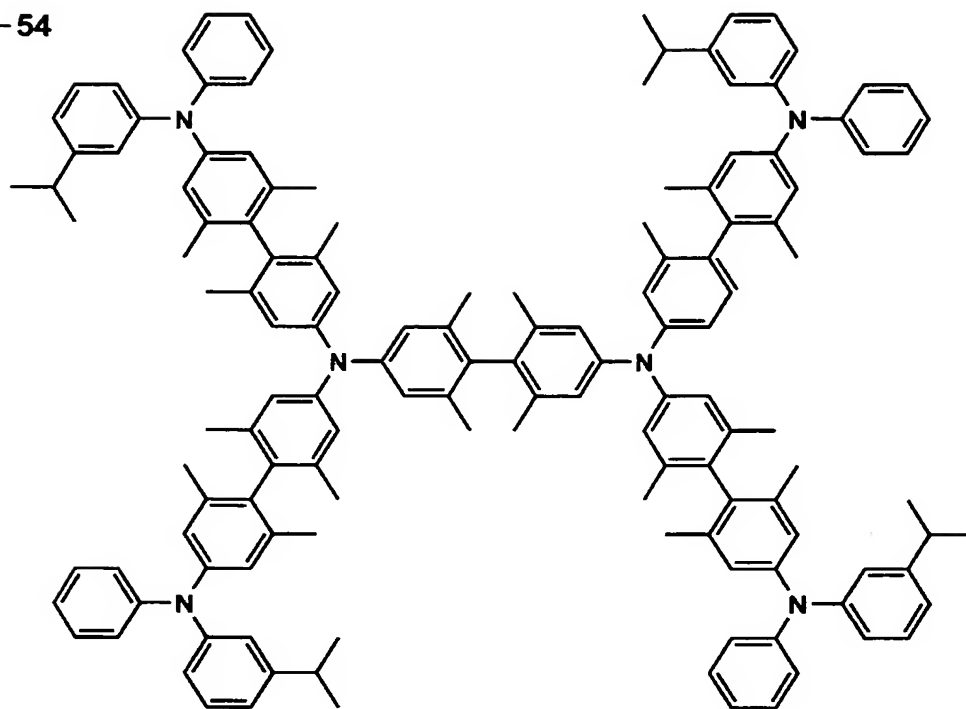
1-53



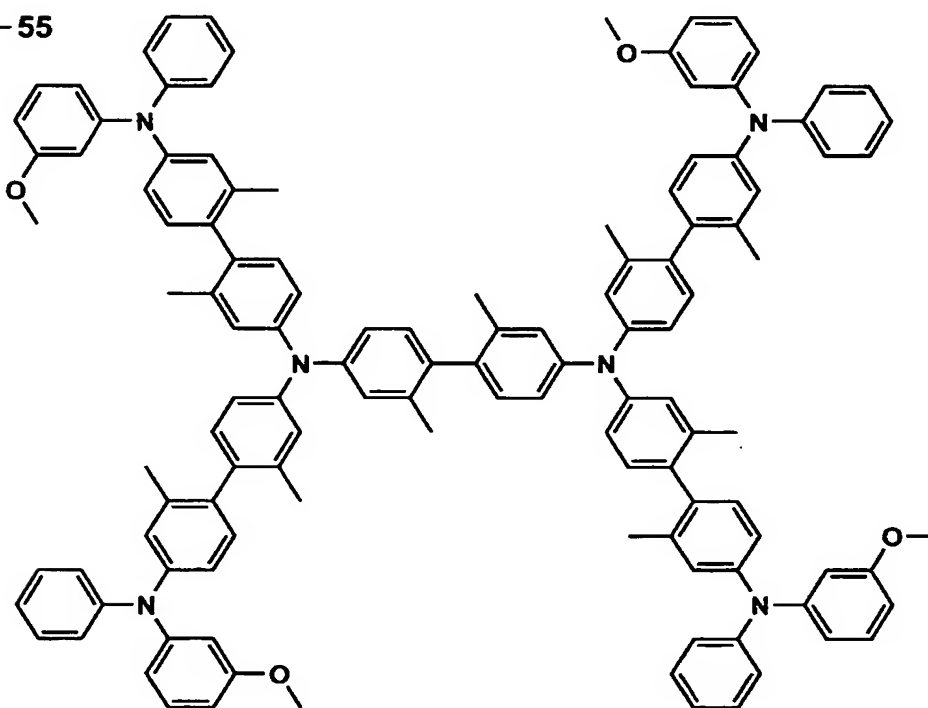
【0132】

【化 49】

1-54



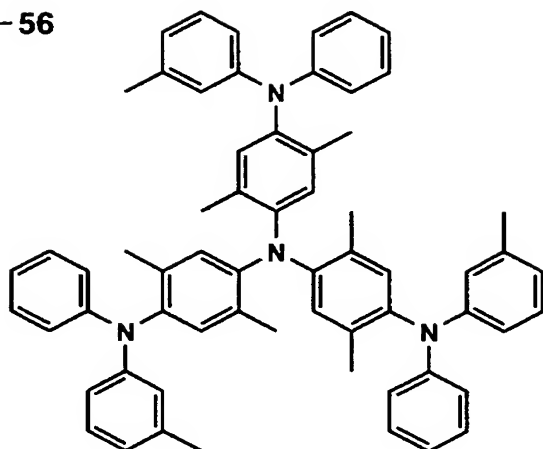
1-55



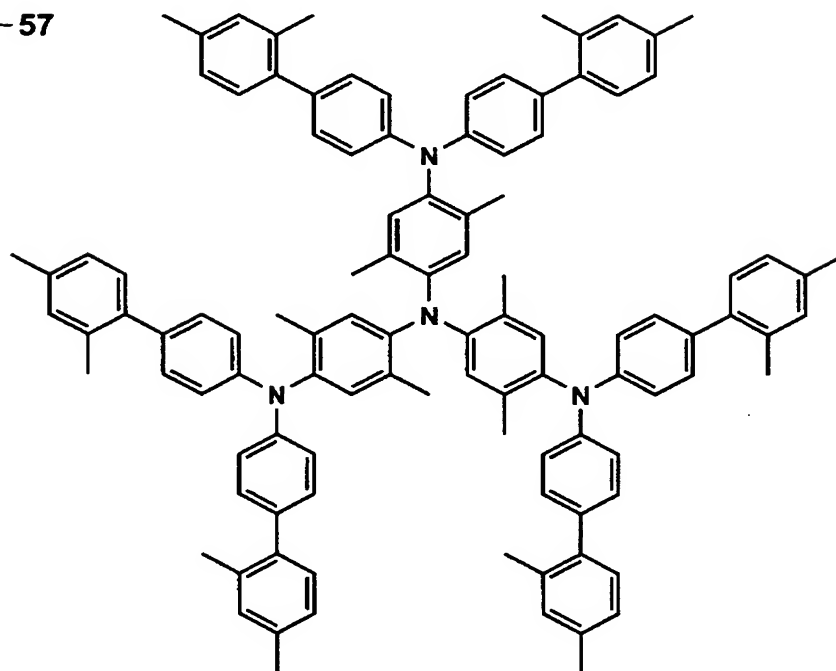
【0133】

【化 50】

1-56



1-57

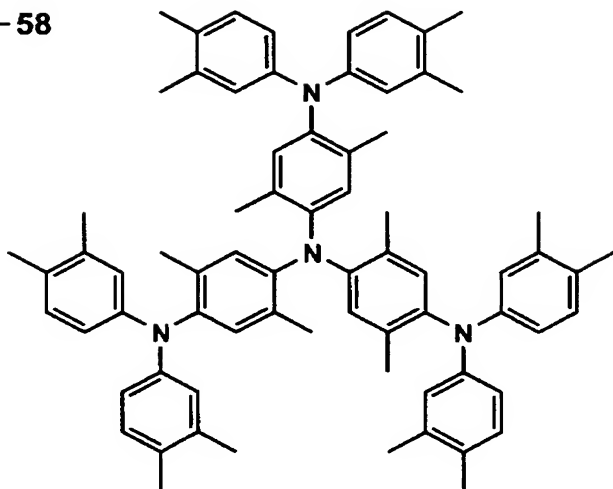


【0134】

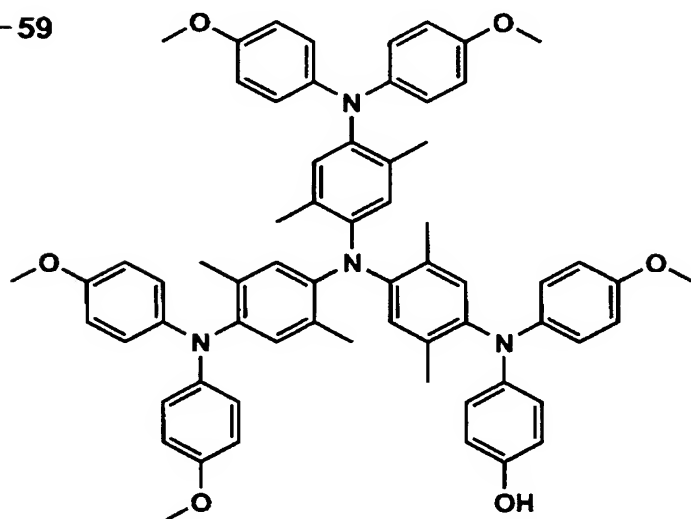


【化 51】

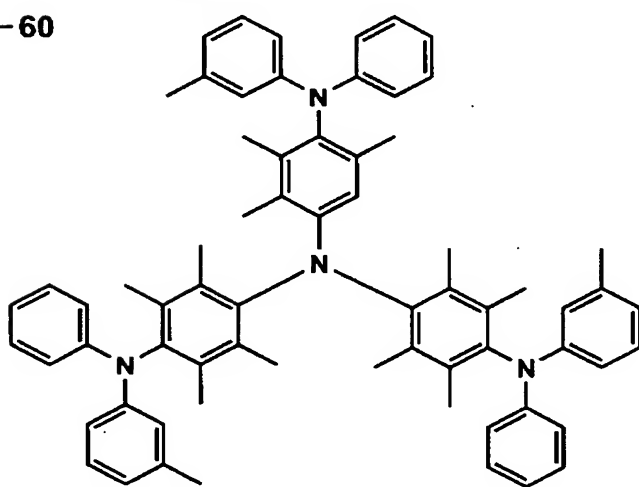
1-58



1-59



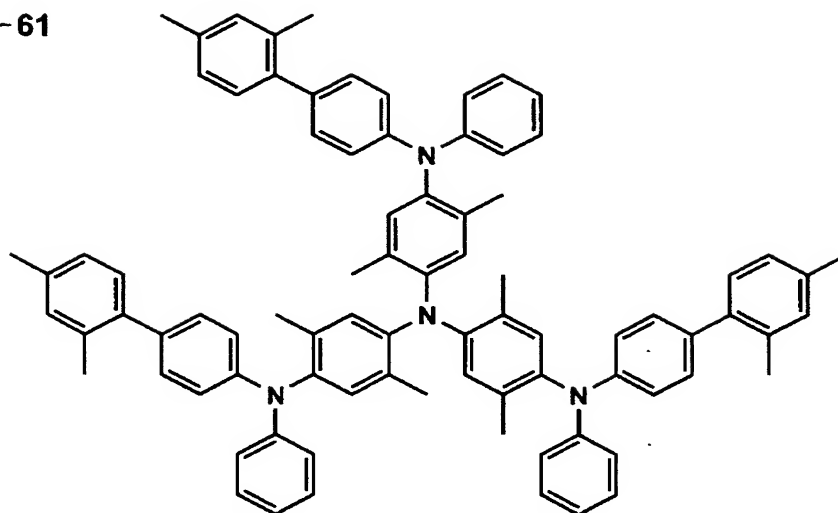
1-60



【0135】

## 【化52】

1-61



## 【0136】

トリアリールアミン化合物は、リン光発光波長が300～450 nmであることが好ましく、更に好ましくは350～430 nmである。これによりより一層発光効率を高めることができる

また、トリアリールアミン化合物の分子量は550～2000であることが好ましい。分子量が550～2000であるとT<sub>g</sub>（ガラス転移温度）が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましい分子量は800～2000である。

## 【0137】

本発明においては、前述したように正孔輸送材料がトリアリールアミン化合物であることが好ましいが、これの他にもフェニレンジアミン骨格を有する化合物においても立体障害基を導入することで、リン光スペクトルの0-0バンドが300～450 nmを満たすことができる。リン光スペクトルの0-0バンドが300～450 nmを満たす正孔輸送材料であれば、これに限るものではない。

## 【0138】

## 《有機EL素子の構成層》

本発明の有機EL素子の構成層について説明する。

## 【0139】

本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

- (i) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- (ii) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- (iii) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極
- (iv) 陽極／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極
- (v) 陽極／陽極バッファ層／正孔輸送層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／陰極バッファ層／陰極

#### 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい（4 e V以上）金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（ITO）、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 等の導電性透明材料が挙げられる。また、 $\text{In}_2\text{O}_3-\text{ZnO}$ （IDIXO）等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は（ $100\mu\text{m}$ 以上程度）、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10～1000 nm、好ましくは10～200 nmの範囲で選ばれる。

#### 【0140】

#### 《陰極》

一方、陰極としては、仕事関数の小さい（4 e V以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシ

ウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百  $\Omega/\square$  以下が好ましく、膜厚は通常 10 nm～5  $\mu\text{m}$ 、好ましくは 50～200 nm の範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機 EL 素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

#### 【0141】

また、陰極に上記金属を 1～20 nm の膜厚で作製した後に、陽極の説明で挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有する素子を作製することができる。

#### 【0142】

次に、本発明の有機 EL 素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、電子輸送層等について説明する。

#### 【0143】

《注入層》：電子注入層、正孔注入層

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

#### 【0144】

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機 EL 素子とその工業化最前線（1998年11月30日エ

ヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」（123～166頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

#### 【0145】

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

#### 【0146】

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1nm～5μmの範囲が好ましい。

#### 【0147】

《阻止層》：正孔阻止層、電子阻止層

阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば特開平11-204258号、同11-204359号、及び「有機EL素子とその工業化最前線（1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行）」の237頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

#### 【0148】

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻

止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0149】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0150】

《発光層》

本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であつても発光層と隣接層との界面であつてもよい。

【0151】

発光層に使用される材料（以下、発光材料という）は、リン光性化合物であり、本発明においてリン光性化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物であり、室温（25℃）にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25℃において0.01以上の化合物である。リン光量子収率は好ましくは0.1以上である。

【0152】

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられるリン光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

【0153】

リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネ

ルギーよりも低いことが条件である。

【0154】

リン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。

【0155】

本発明で用いられるリン光性化合物としては、好ましくは元素の周期律表で8族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物（白金錯体系化合物）、希土類錯体であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

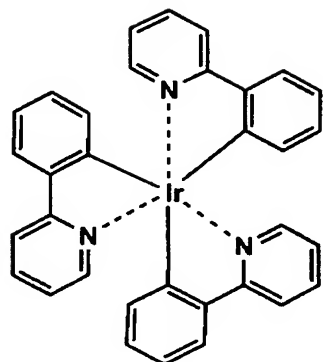
【0156】

以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、*Inorg. Chem.* 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。

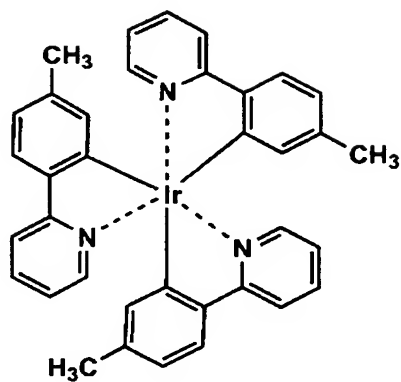
【0157】

【化 5 3】

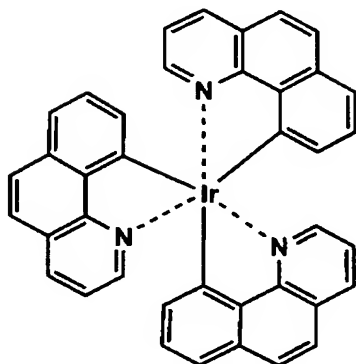
Ir-1



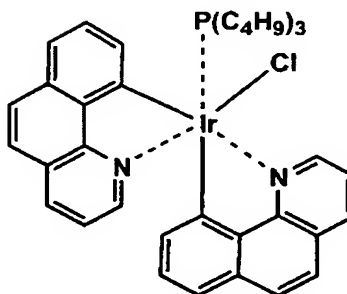
Ir-2



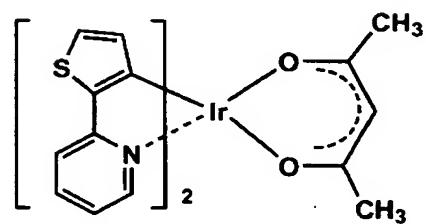
Ir-3



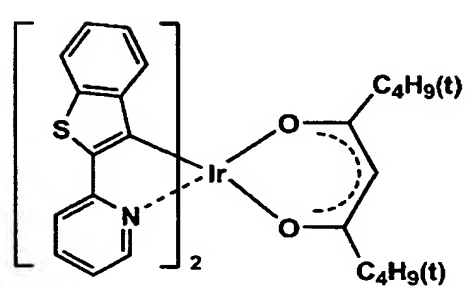
Ir-4



Ir-5



Ir-6

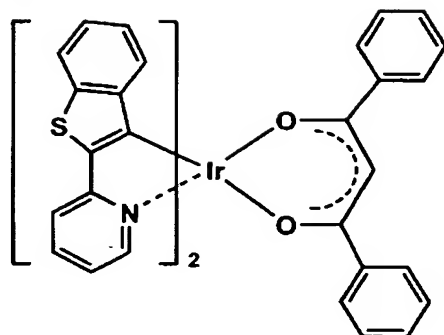


【0 1 5 8】

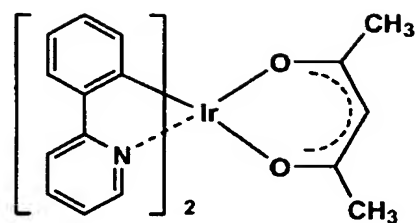


【化 5 4】

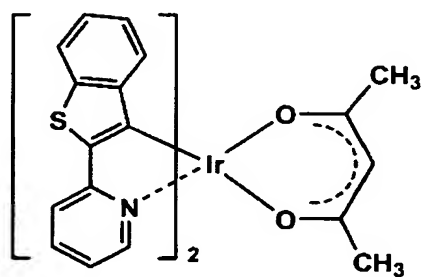
Ir-7



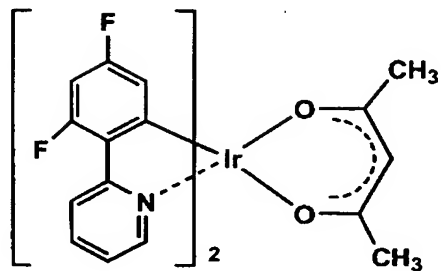
Ir-8



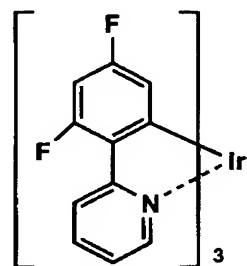
Ir-9



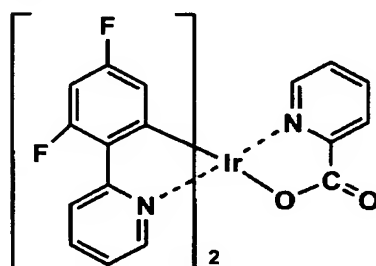
Ir-10



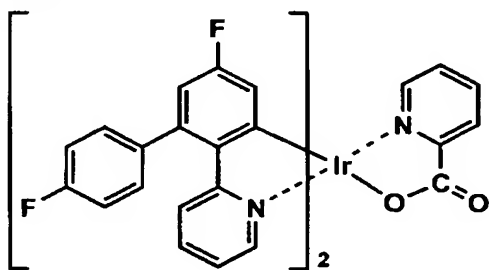
Ir-11



Ir-12



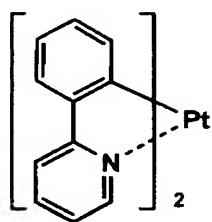
Ir-13



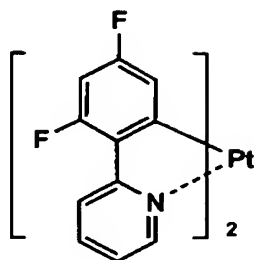
【0159】

【化 55】

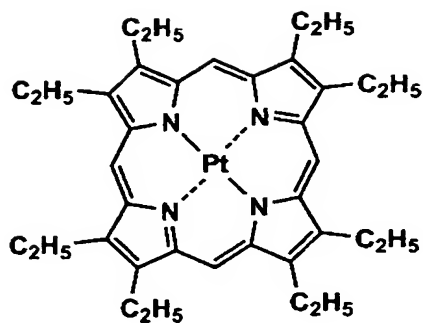
Pt-1



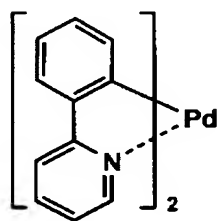
Pt-2



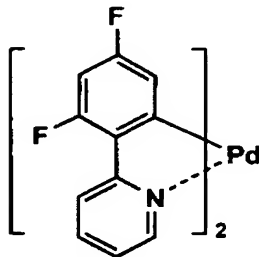
Pt-3



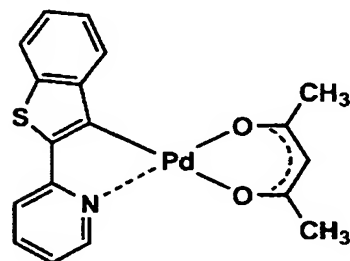
Pd-1



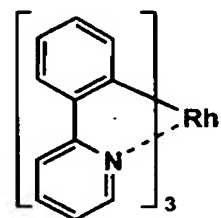
Pd-2



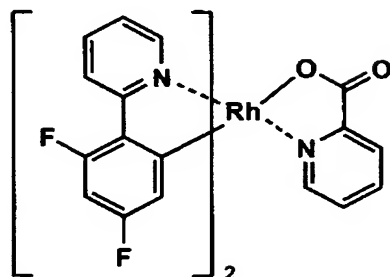
Pd-3



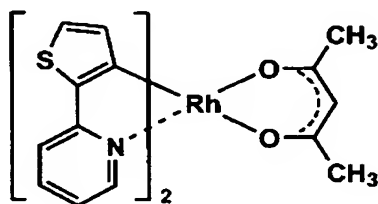
Rh-1



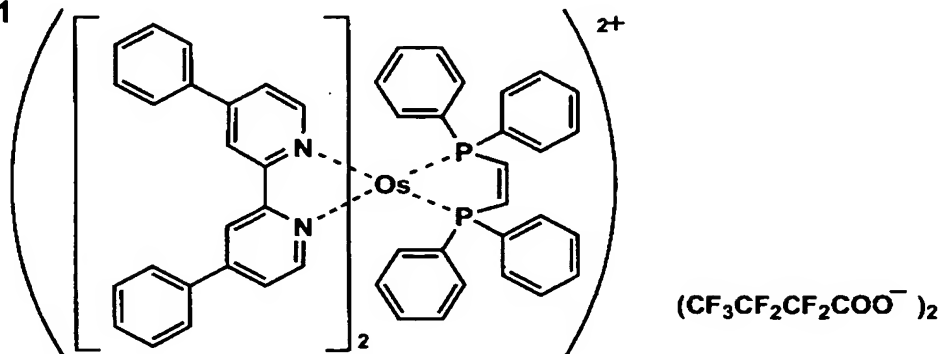
Rh-2



Rh-3

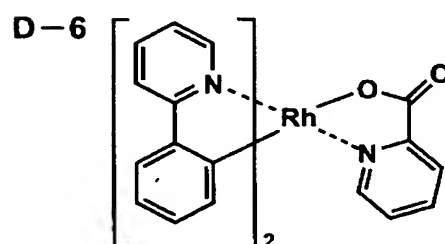
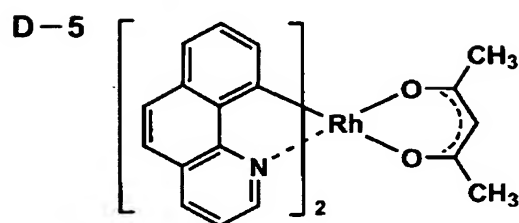
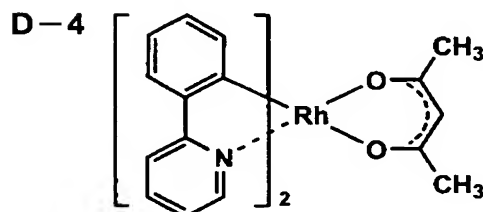
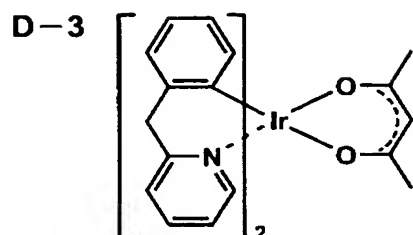
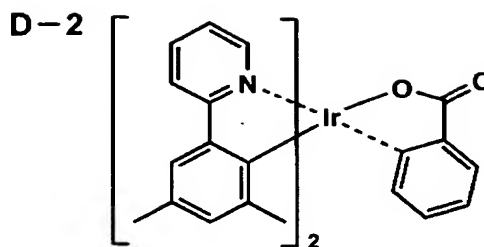
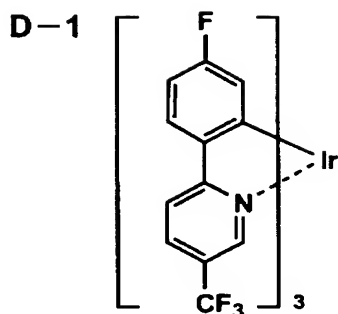


A-1



【0160】

## 【化 56】



## 【0161】

本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380～480 nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。このような青色リン光発光の有機EL素子や、白色リン光発光の有機EL素子で、より一層発光効率を高めることができる。

## 【0162】

また、発光層には、リン光性化合物の他にホスト化合物を含有してもよい。

本発明においてホスト化合物は、発光層に含有される化合物のうちで室温（25℃）においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物である。

## 【0163】

ホスト化合物は、有機化合物または錯体であることが好ましく、本発明においては、ホスト化合物の励起3重項エネルギーがリン光性化合物の励起3重項エネルギーよりも大きいことが好ましい。

#### 【0164】

本発明では、ホスト化合物のリン光スペクトルの0-0バンドが300～450nmであることが好ましく、これにより、より一層発光効率を高め、特にBGR発光が可能となる。

#### 【0165】

つまりホスト化合物の励起3重項エネルギーがリン光性化合物の励起3重項エネルギーよりも大きくすることにより、ホスト化合物からリン光性化合物へのエネルギー移動型のリン光発光が可能である。またホスト化合物のリン光スペクトルにおける0-0バンドの波長が450nm以下である化合物は非常にワイドバンドギャップ（イオン化ポテンシャル-電子親和力、HOMO-LUMO）であるので、キャリアトラップ型にも有利に働く。

#### 【0166】

このようなホスト化合物としては、有機EL素子に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができ、また後述する正孔輸送材料や電子輸送材料のほとんどが発光層のホスト化合物としても使用できる。

#### 【0167】

ポリビニルカルバゾールやポリフルオレンのような高分子材料でもよく、さらに前記ホスト化合物を高分子鎖に導入した、または前記ホスト化合物を高分子の主鎖とした高分子材料を使用してもよい。

#### 【0168】

さらに、ホスト化合物及びリン光性化合物を複数種用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素子を高効率化することができる。また、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドーピング量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

## 【0169】

ホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T<sub>g</sub>（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

## 【0170】

ホスト化合物としてはカルバゾール誘導体が好ましく、カルバゾール環単体、更に好ましくはN-フェニルカルバゾール単体、もしくはN-アルキルカルバゾール単体の性能を有する化合物が有効である。カルバゾール環単体、N-フェニルカルバゾール単体、もしくはN-アルキルカルバゾール単体であるとガラス転移点が高く、素子寿命の点から思わしくないため、熱的安定性を確保するために高分子量化するが、その際、カルバゾール環単体、N-フェニルカルバゾール単体、もしくはN-アルキルカルバゾール単体の性能を維持できるように、連結基には十分な配慮が必要である。

## 【0171】

これまで有機EL材料に用いられてきたように単純なフェニル基、ナフタレン基で連結すると、共役が延びることで、励起3重項エネルギーが小さくなってしまふ。よって、連結には置換基により芳香環の2面角を50度以上になるようにねじることやアルキル基を用いることで性能を維持できる。

## 【0172】

本発明においては、以下に示す一般式のカルバゾール誘導体が好ましい。

まず、前記一般式11で表される化合物が挙げられる。

## 【0173】

前記一般式11で、R<sub>1001</sub>～R<sub>1013</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。

## 【0174】

R<sub>1001</sub>～R<sub>1013</sub>はがアリール基、ヘテロアリール基である場合、アリール基、ヘテロアリール基とフェニルカルバゾールに連結する二面角は50度以上である事が好ましい。これは置換基を導入することで立体的に制御することができる。

## 【0175】

なお、上述した本発明で用いる正孔輸送材料で説明したように、置換基、アリ

ール基、ヘテロアリール基のみでリン光 0-0 バンドが 450 nm 以上である基は適当ではない。

【0176】

置換基を導入せず立体的な制御を行わない場合、二面角は 50 度以下になるのが一般的である。この様な状態では、共役長が延びることで、励起 3 重項エネルギーが小さくなる場合がある（リン光の 0-0 バンドが長波長化する。）

次に、前記一般式 12 で表される化合物が挙げられる。

【0177】

前記一般式 12 で、R<sub>1021</sub>は、アルキル基、シクロアルキル基、もしくはフッ化アルキル基を表し、R<sub>1022</sub>～R<sub>1029</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、少なくとも一つは置換基を表す。

【0178】

R<sub>1022</sub>～R<sub>1029</sub>がアリール基、ヘテロアリール基である場合、アリール基、ヘテロアリール基とフェニルカルバゾールに連結する二面角は 50 度以上であることが好ましい。

【0179】

次に、前記一般式 13 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 13 で、R<sub>1031</sub>～R<sub>1046</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表し、L<sub>3</sub>は 2 価の連結基、もしくは直接結合を表すが、直接結合の場合は R<sub>1037</sub>、R<sub>1038</sub>、R<sub>1045</sub>、R<sub>1046</sub>のうちいずれかは置換基を表す。

【0180】

次に、前記一般式 14 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 14 で、R<sub>1051</sub>～R<sub>1063</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R<sub>1057</sub>、R<sub>1058</sub>、R<sub>1062</sub>、R<sub>1063</sub>のいずれかは置換基を表す。

【0181】

次に、前記一般式 15 で表される化合物が挙げられる。

前記一般式 15 で、R<sub>1071</sub>～R<sub>1079</sub>は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表すが、R<sub>1072</sub>、R<sub>1073</sub>のいずれかは置換基を表す。n は、1～8 の整数を表す。

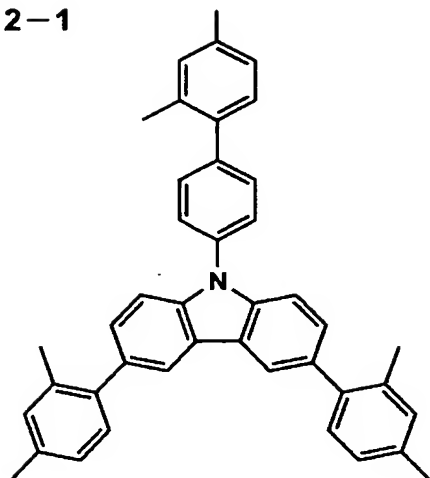
## 【 0 1 8 2 】

以下に、カルバゾール誘導体の化合物例を示すが、これらに限定されるものではない。

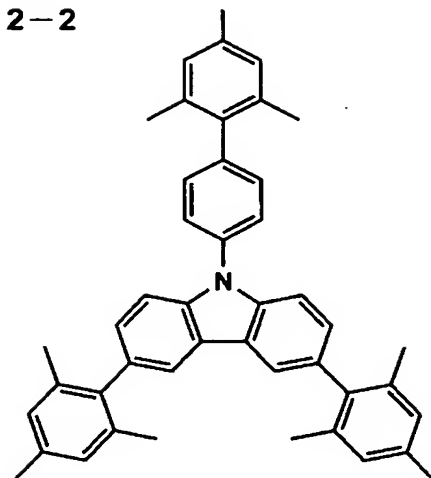
## 【 0 1 8 3 】

【化 57】

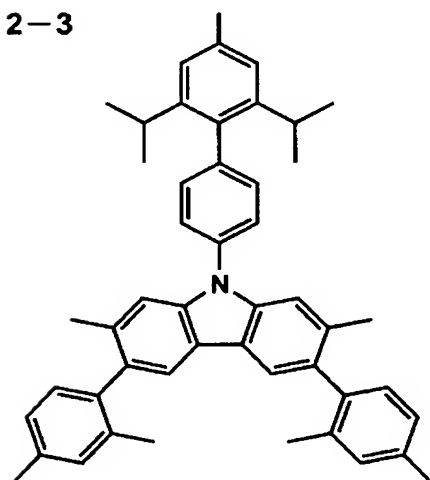
2-1



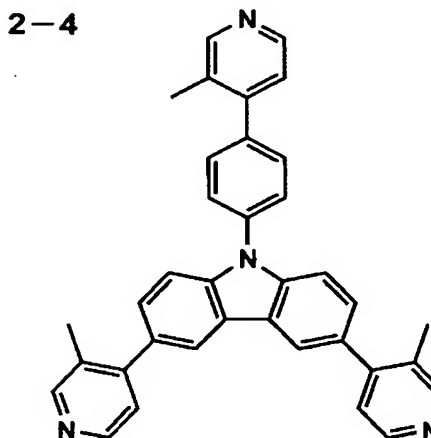
2-2



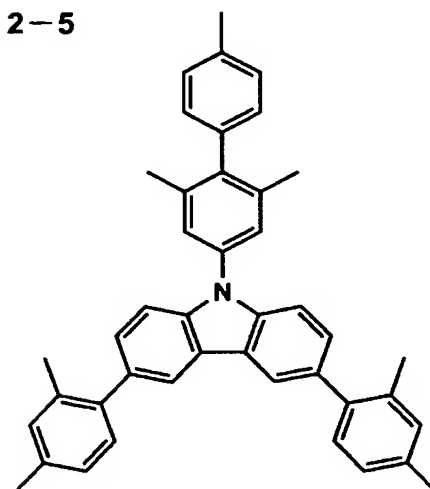
2-3



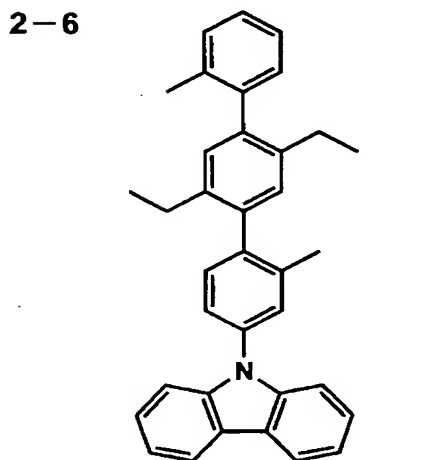
2-4



2-5



2-6

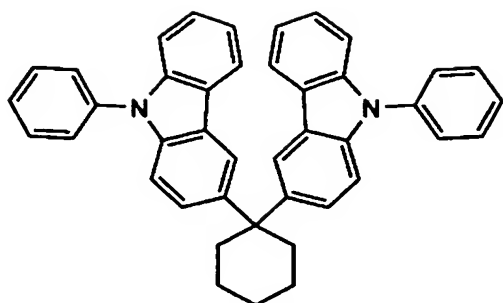


【0184】

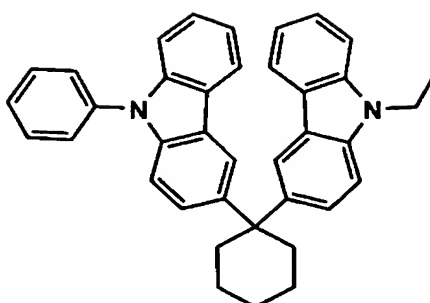


【化 58】

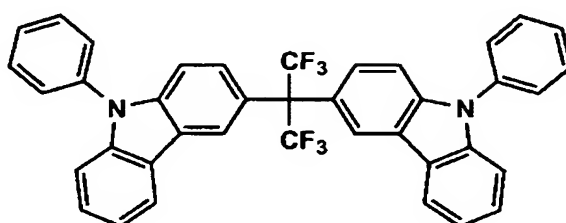
2-7



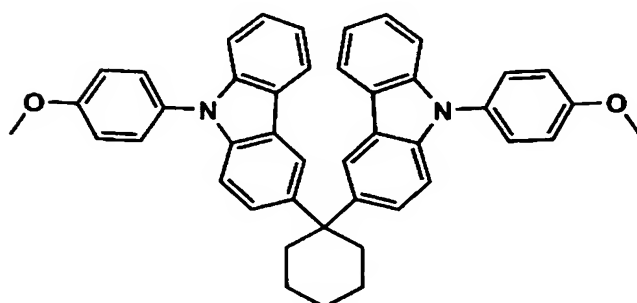
2-8



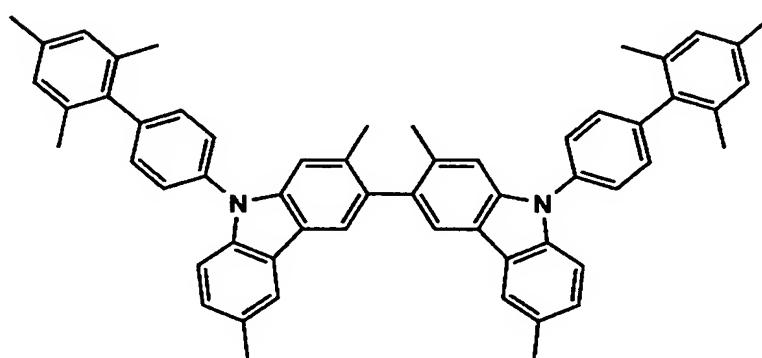
2-9



2-10

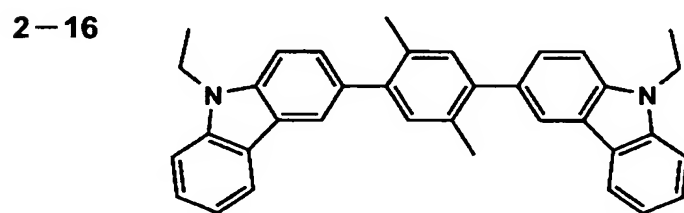
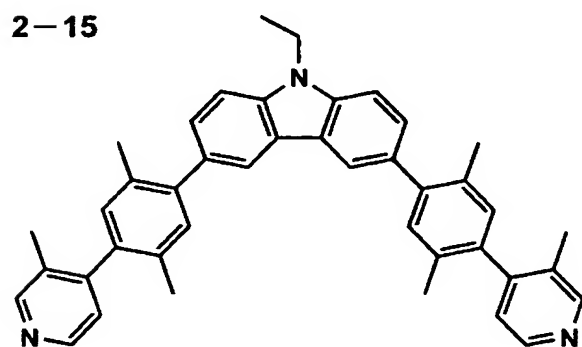
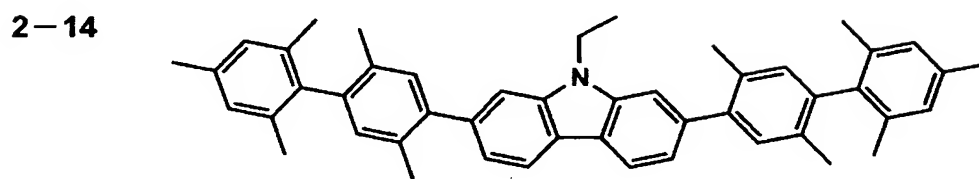
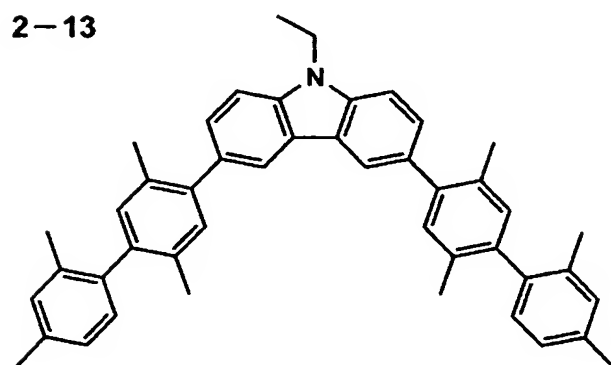
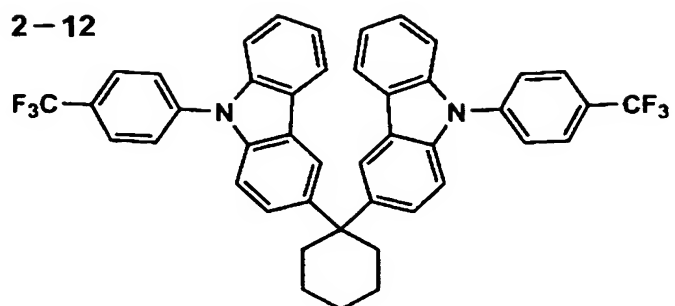


2-11



【0185】

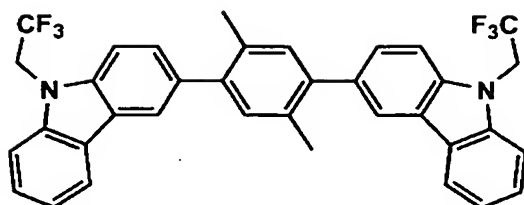
【化 59】



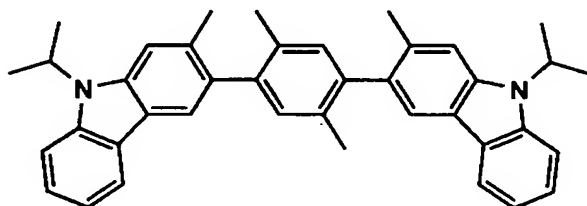
【0186】

【化 60】

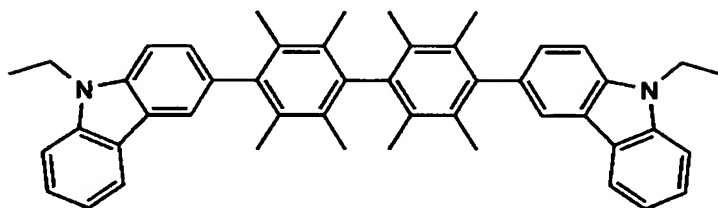
2-17



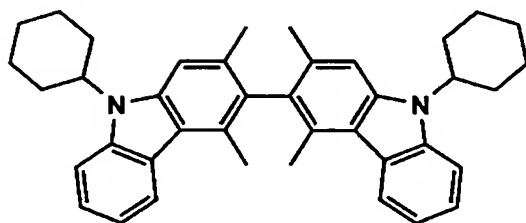
2-18



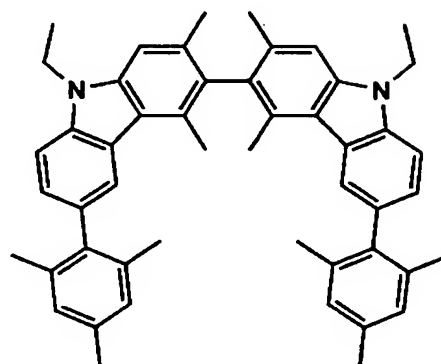
2-19



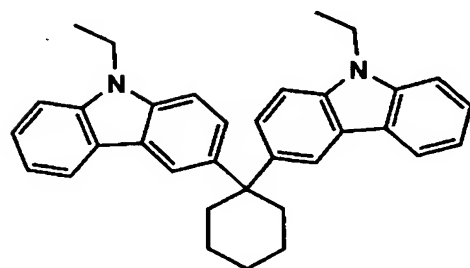
2-20



2-21



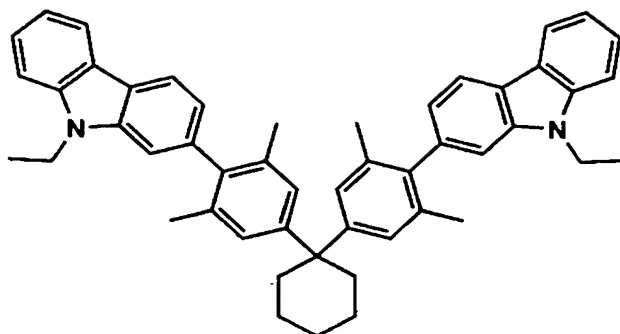
2-22



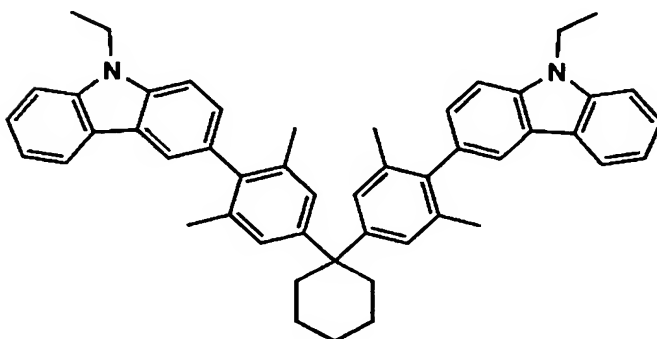
【0187】

【化 6 1】

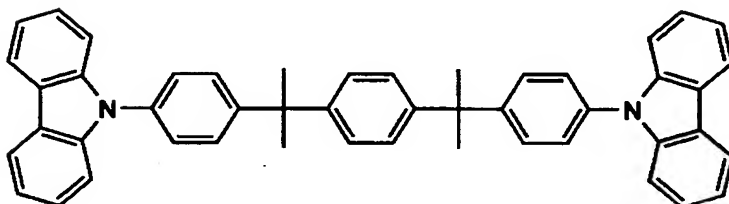
2-23



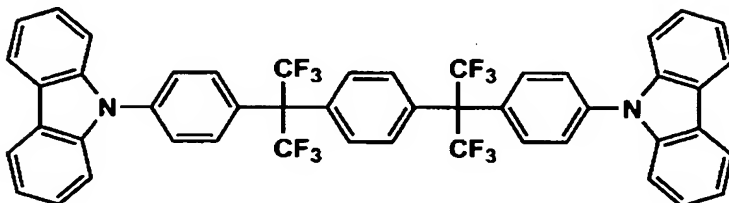
2-24



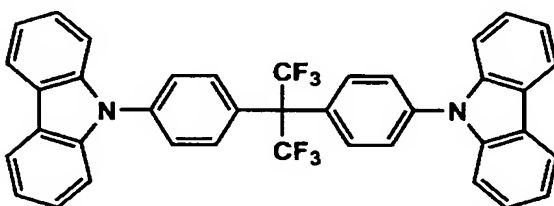
2-25



2-26



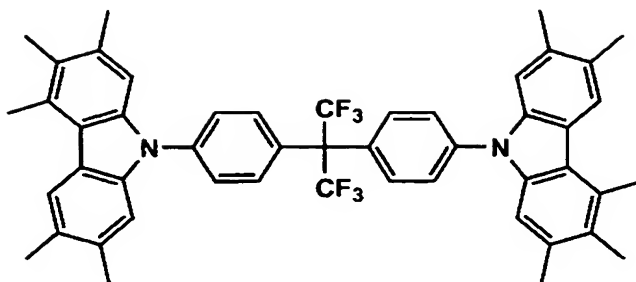
2-27



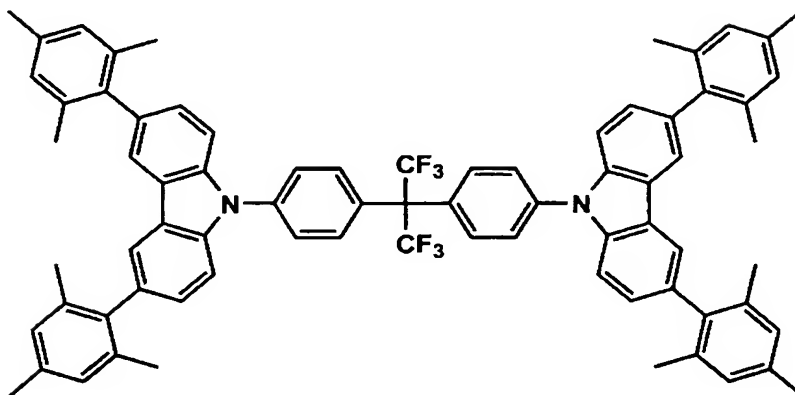
【0188】

【化 6 2】

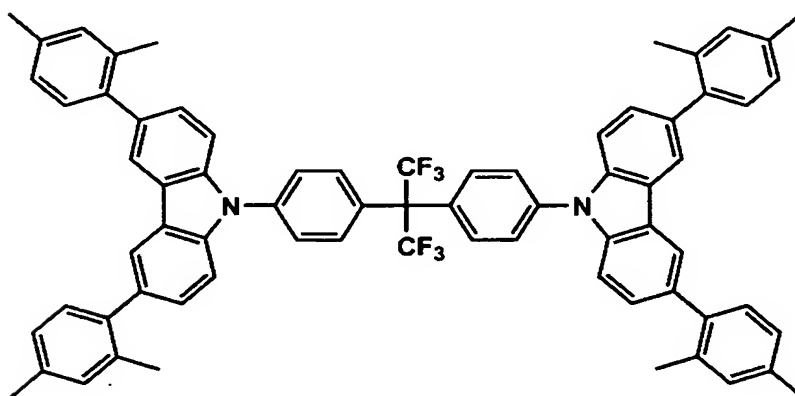
2-28



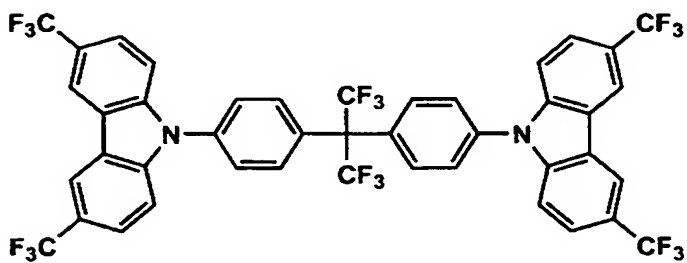
2-29



2-30



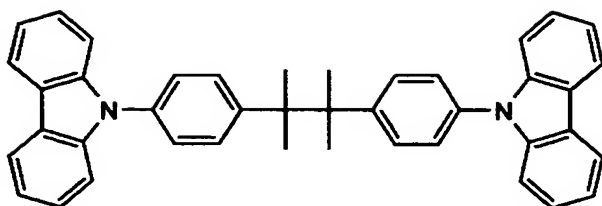
2-31



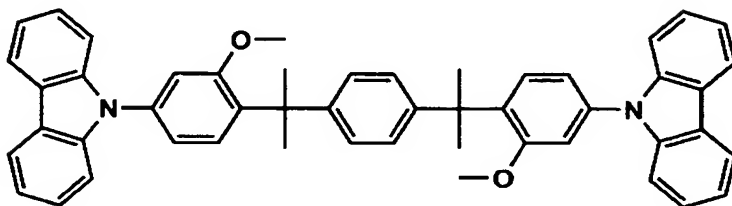
【0189】

## 【化 6 3】

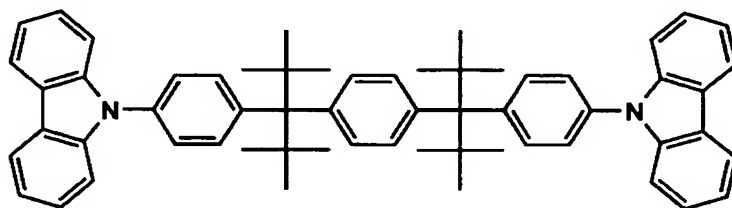
2-32



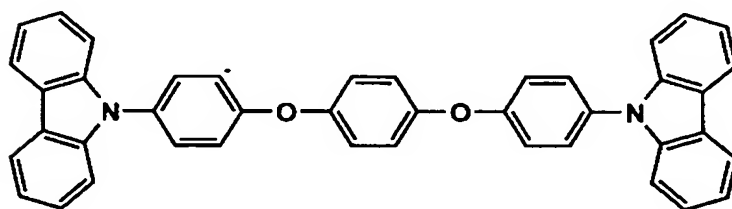
2-33



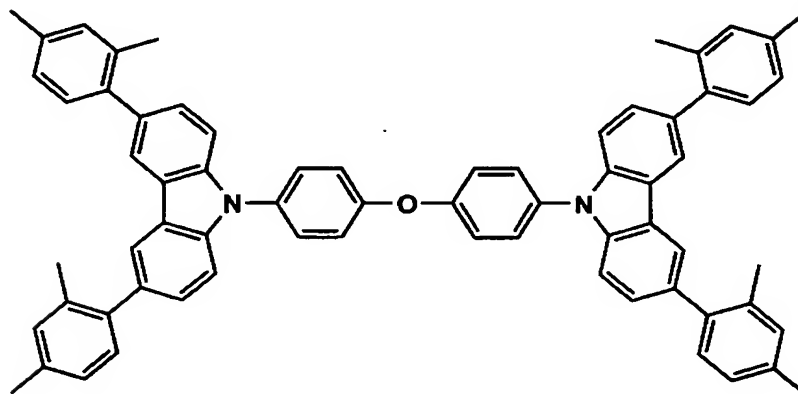
2-34



2-35



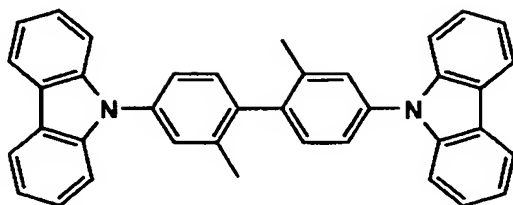
2-36



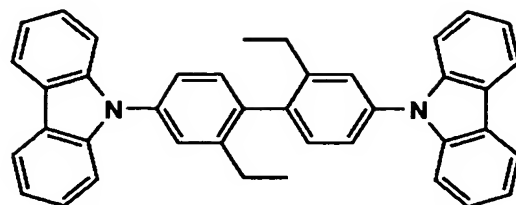
【0190】

## 【化 6 4】

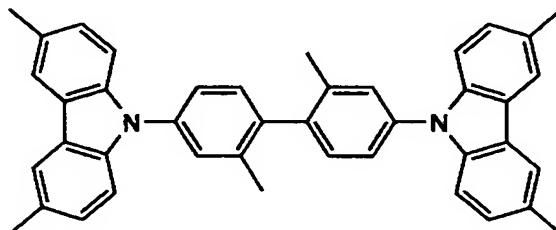
2-37



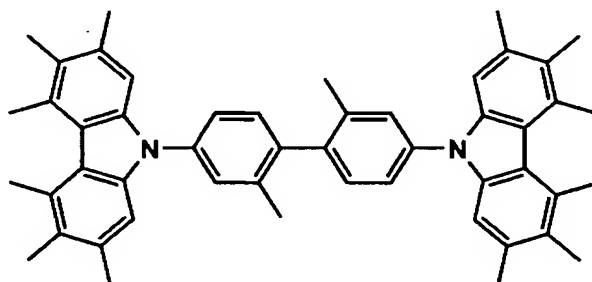
2-38



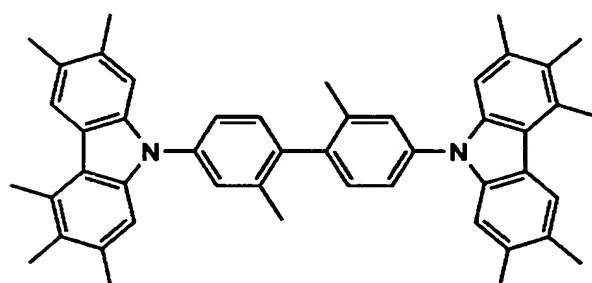
2-39



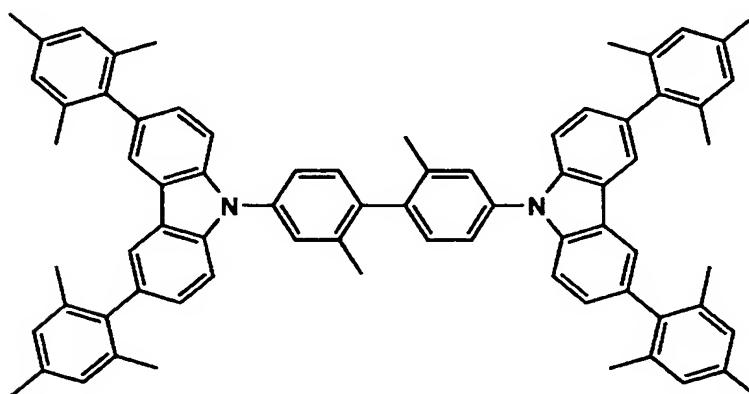
2-40



2-41



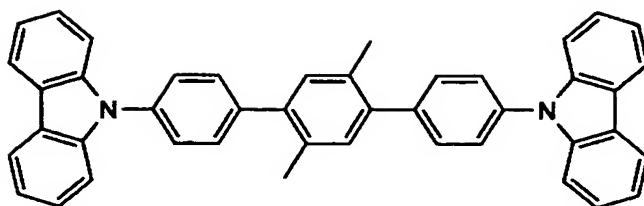
2-42



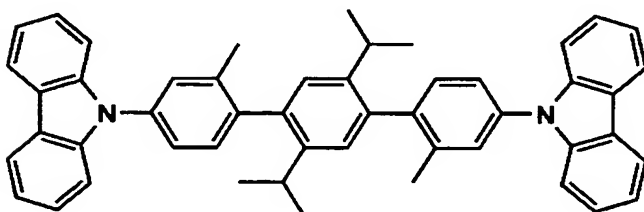
【0191】

【化 6 5】

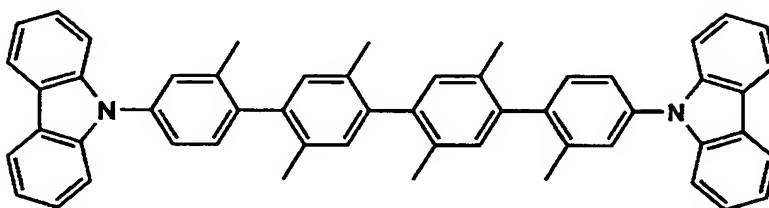
2-43



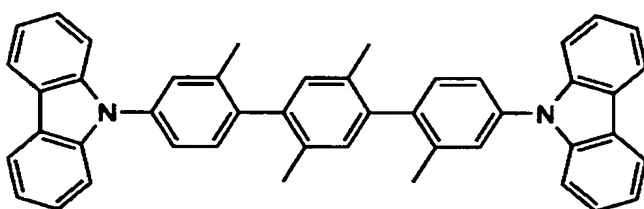
2-44



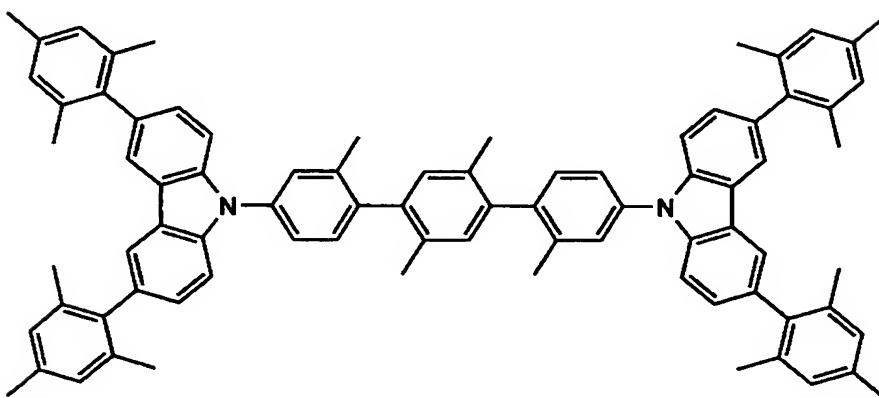
2-45



2-46



2-47

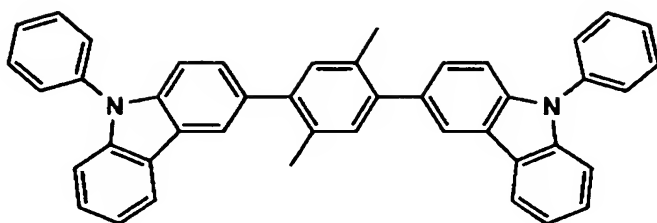


【0192】

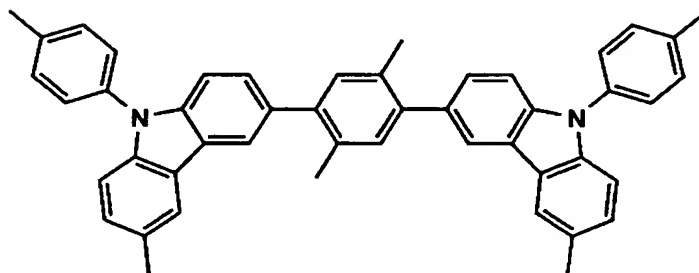


【化 6 6】

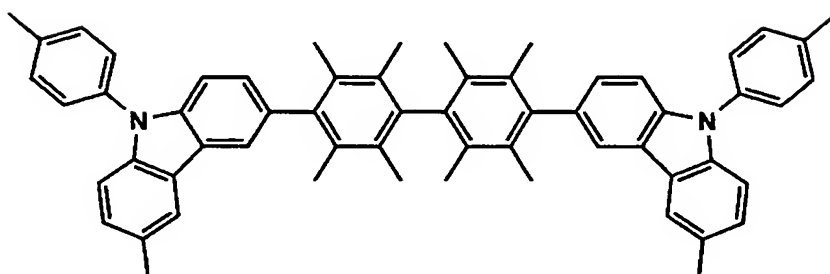
2-48



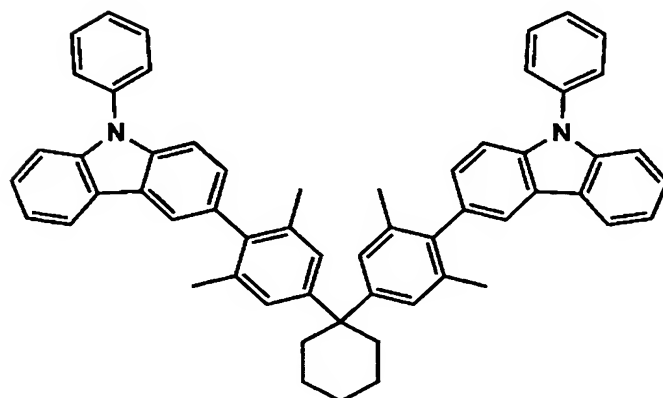
2-49



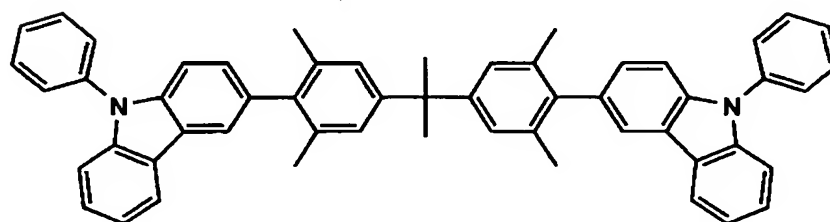
2-50



2-51



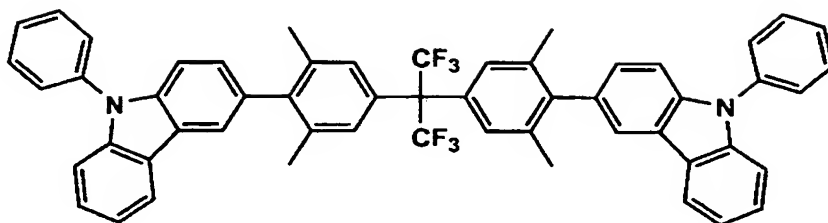
2-52



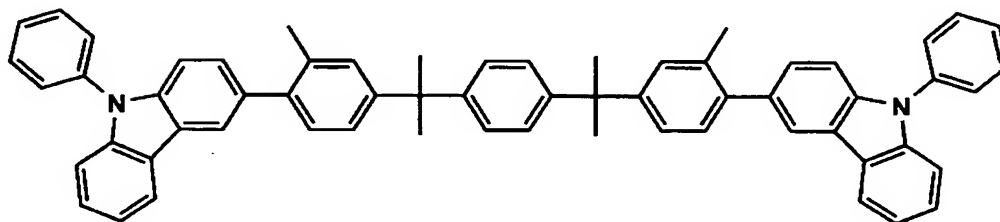
【0193】

## 【化 67】

2-53



2-54



## 【0194】

本発明においては、本発明の正孔輸送材料と上述したホスト化合物を組み合わせることで、特に発光効率において大きな効果が得られる。

## 【0195】

また、発光層は、ホスト化合物としてさらに蛍光極大波長を有するホスト化合物を含有していてもよい。この場合、他のホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する他のホスト化合物からの発光も得られる。蛍光極大波長を有するホスト化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフエン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁（1992年版、丸善）に記載の方法により測定することができる。

## 【0196】

本明細書の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」（日本色彩学会編、

東京大学出版会、1985)の108頁の図4. 16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

#### 【0197】

発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5nm～5μm、好ましくは5～200nmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらのリン光性化合物やホスト化合物が1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

#### 【0198】

##### 《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

#### 【0199】

本発明において、発光層に隣接する正孔輸送材料には、前述した正孔輸送材料を1種又は2種以上用いることができる。

#### 【0200】

本発明では、発光層に隣接する正孔輸送層の正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルが5.00～5.70eVであることが好ましい。さらに好ましくは、5.00～5.45eVである。これにより、より一層発光効率を高め、駆動電圧を下げるができる。

#### 【0201】

本発明において、イオン化ポテンシャルとは、化合物のHOMO(最高被占分子軌道)レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、具体的には膜状態(層状態)の化合物から電子を取り出すのに必要なエネルギーであり、これらは光電子分光法で直接測定することができる。本発明では、アルバックーフアイ(株)製ESCA 5600 UPS(ultraviolet)

et photoemission spectroscopy) にて測定される値を用いている。

### 【0202】

本発明では、発光層に隣接する正孔輸送層の正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と発光層のリン光性化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p3}$  とが下式を満たすことが好ましく、これにより、エネルギー効率を向上させ、より一層発光効率を高めることができる。

$$-0.1 \leq I_{p3} - I_{p1} \leq 0.5$$

本発明では、発光層に隣接する正孔輸送層の正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  と発光層のホスト化合物のイオン化ポテンシャル  $I_{p2}$  とが下式を満たすことが好ましく、これにより、エネルギー効率を向上させ、より一層発光効率を高めることができる。

$$0.3 < I_{p2} - I_{p1} < 1.0$$

本発明では、発光層に隣接する正孔輸送層の正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と発光層のリン光性化合物の励起三重項準位  $T3$  とが下式を満たすことが好ましい。

$$0.5 < T3 - E_{a1} < 1.3$$

$T3$  はリン光性化合物の  $I_{p3}$  から励起三重項エネルギーを引くことで求めることができる。

### 【0203】

励起三重項状態のリン光性化合物は基底状態より活性であり酸化されやすい状態となっている。従ってリン光性化合物の周囲に存在する正孔輸送材料との電子の授受により失活してしまう場合があるが、正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  とリン光性化合物の電子親和力  $E_{a3}$  とが上述の関係を満たすことにより、電子の授受を制限して失活を防止し、これによりより一層発光効率を高めることができる。

### 【0204】

本発明において、電子親和力は、真空準位にある電子が物質の LUMO (最低空分子軌道) レベルに落ちて安定化するエネルギーで定義され、

電子親和力 (eV) = イオン化ポテンシャル  $I_p$  (eV) + バンドギャップ (eV)

で求めることができる。

#### 【0205】

本発明において、バンドギャップとは、分子のHOMO-LUMO間のエネルギーを表し、具体的には石英基板上に膜を作製し、吸収スペクトルを測定し、その吸収端から求める。

#### 【0206】

本発明では、発光層に隣接する正孔輸送層の正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  と発光層のホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが  $0.1 < E_{a2} - E_{a1} < 0.8$  を満たすことが好ましく、 $0.3 < E_{a2} - E_{a1} < 0.5$  を満たすことが最も好ましい。正孔輸送材料の電子親和力  $E_{a1}$  とホスト化合物の電子親和力  $E_{a2}$  とが上述の関係を満たすことにより、ホスト化合物に正孔輸送材料から電子が送られるのを制限し、これにより正孔と電子の再結合を高めることができ、より一層発光効率を高めることができる。

#### 【0207】

本発明では、正孔輸送層に隣接し、発光層とは反対側にさらに正孔輸送層を有し、この正孔輸送層のイオン化ポテンシャル  $I_{p4}$  と発光層に隣接する正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル  $I_{p1}$  とが  $0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$  を満たしていることが好ましい。上述の関係を満たす正孔輸送層をさらに設けることにより、陽極と正孔輸送層とのエネルギーギャップ差により正孔輸送層への正孔の注入がスムーズに行われていなかったのを改善して正孔注入を効率よく行うことができ、これにより、より一層発光効率を高めることができ、駆動電圧を下げることができる。さらにこのとき、発光層に隣接する正孔輸送層の膜厚が  $5 \sim 20 \text{ nm}$  であることが好ましく、これにより、正孔輸送層への正孔注入がより効果的に行われ、さらに一層発光効率を高めることができる。特に、駆動電圧を下げることができる。

#### 【0208】

正孔輸送層に隣接し、発光層とは反対側に位置する正孔輸送層に含有される正

孔輸送材料には、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

#### 【0209】

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

#### 【0210】

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノフェニル; N, N' - ジフェニル - N, N' - ビス (3 - メチルフェニル) - [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン (TPD); 2, 2 - ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) プロパン; 1, 1 - ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) シクロヘキサン; N, N, N', N' - テトラ - p - トリル - 4, 4' - ジアミノビフェニル; 1, 1 - ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン; ビス (4 - ジメチルアミノ - 2 - メチルフェニル) フェニルメタン; ビス (4 - ジ - p - トリルアミノフェニル) フェニルメタン; N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ (4 - メトキシフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニル; N, N, N', N' - テトラフェニル - 4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4' - ビス (ジフェニルアミノ) クオードリフェニル; N, N, N - トリ (p - トリル) アミン; 4 - (ジ - p - トリルアミノ) - 4' - [4 - (ジ - p - トリルアミノ) スチリル] スチルベン; 4 - N, N - ジフェニルアミノ - (2 - ジフェニルビニル) ベンゼン; 3 - メトキシ - 4' - N, N - ジフェニルアミノスチルベンゼン; N - フェニルカルバゾール、さらには、米国特許第 5

、061、569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば4, 4'-ビス〔N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ〕ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4"-トリス〔N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

#### 【0211】

さらに、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

#### 【0212】

正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5-200nmである。この正孔輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

#### 【0213】

##### 《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層設けることができる。

#### 【0214】

従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、下記の材料が知られている。

#### 【0215】

さらに、電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択

して用いることができる。

#### 【0216】

この電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という）の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

#### 【0217】

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

#### 【0218】

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）、トリス（5, 7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5, 7-ジブromo-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛（Znq）等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

#### 【0219】

電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、薄膜



化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5 nm～5 μm程度、好ましくは5～200 nmである。電子輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

#### 【0220】

《基体（基板、基材、支持体等ともいう）》

本発明の有機EL素子は基体上に形成されているのが好ましい。

#### 【0221】

本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

#### 【0222】

樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート（PC）、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）等からなるフィルム等が挙げられる。樹脂フィルムの表面には、無機物または有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

#### 【0223】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。ここに、外部取り出し量子効率（%）＝有機EL素子外部に発光した光子数／有機EL素子に流した電子数×100である。

#### 【0224】

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光のλ<sub>ma</sub>

x は 480 nm 以下が好ましい。

#### 【0225】

##### 《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

#### 【0226】

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1  $\mu$ m 以下、好ましくは10～200 nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に有機EL素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層の有機化合物薄膜を形成させる。

#### 【0227】

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス（スピコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法）等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法、スピコート法、インクジェット法、印刷法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度50～450℃、真空度 $10^{-6}$ ～ $10^{-2}$  Pa、蒸着速度0.01～50 nm/秒、基板温度-50～300℃、膜厚0.1 nm～5  $\mu$ m、好ましくは5～200 nmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

#### 【0228】

これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1  $\mu$ m 以下好ましくは50～200 nmの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

**【0229】**

本発明の多色の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通であるのでシャドーマスク等のパターンニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

**【0230】**

発光層のみパターンニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマスクを用いたパターンニングが好ましい。

**【0231】**

また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると、発光が観測できる。また交流電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

**【0232】**

本発明の多色の表示装置は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源として用いることができる。表示デバイス、ディスプレイにおいて、青、赤、緑発光の3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

**【0233】**

表示デバイス、ディスプレイとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合は駆動方式は単純マトリックス（パッシブマトリックス）方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

**【0234】**

発光光源としては家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

**【0235】**

また、本発明に係る有機EL素子に共振器構造を持たせた有機EL素子として用いてもよい。

#### 【0236】

このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザー発振をさせることにより、上記用途に使用してもよい。

#### 【0237】

##### 《表示装置》

本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような1種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画画像を直接視認するタイプの表示装置（ディスプレイ）として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合は駆動方式は単純マトリクス（パッシブマトリクス）方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよい。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。さらに、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、有機EL発光の $\lambda_{max}$ は480nm以下であることが好ましい。

#### 【0238】

本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。

#### 【0239】

図1は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの模式図である。

#### 【0240】

ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部

Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

#### 【0241】

制御部Bは、表示部Aと電氣的に接続され、複数の画素それぞれに外部からの画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

#### 【0242】

図2は、表示部Aの模式図である。

表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。図2においては、画素3の発光した光が、白矢印方向（下方向）へ取り出される場合を示している。

#### 【0243】

配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示せず）。

#### 【0244】

画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

#### 【0245】

次に、画素の発光プロセスを説明する。

図3は、画素の模式図である。

#### 【0246】

画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10として、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

## 【0247】

図3において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

## 【0248】

画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。

## 【0249】

制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

## 【0250】

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

## 【0251】

ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

## 【0252】

また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

## 【0253】

本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブマトリクス方式の発光駆動でもよい。

## 【0254】

図4は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。図4において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

## 【0255】

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリクス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

## 【0256】

## 【実施例】

以下、実施例により本発明を説明するが、本発明の実施態様はこれらに限定されるものではない。

## 【0257】

## 実施例1

## 〈有機EL素子1-1～1-19の作製〉

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキsid）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA45）にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートに $\alpha$ -NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵

抗加熱ボートにバソキュプロイン (BCP) を 200 mg 入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに Ir-1 を 100 mg 入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートに Alq<sub>3</sub> を 200 mg 入れ、真空蒸着装置に取付けた。

#### 【0258】

次いで、真空槽を  $4 \times 10^{-4}$  Pa まで減圧した後、 $\alpha$ -NPD の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で透明支持基板に蒸着し第一正孔輸送層を設けた。更に、CBP と Ir-1 の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$ 、 $0.012 \text{ nm/sec}$  で前記正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。更に、BCP の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で前記発光層の上に蒸着して膜厚  $10 \text{ nm}$  の正孔阻止の役割も兼ねた電子輸送層を設けた。その上に、更に、Alq<sub>3</sub> の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度  $0.1 \text{ nm/sec}$  で前記電子輸送層の上に蒸着して更に膜厚  $40 \text{ nm}$  の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

#### 【0259】

引き続きフッ化リチウム  $0.5 \text{ nm}$  及びアルミニウム  $110 \text{ nm}$  を蒸着して陰極を形成し、有機 EL 素子 1-1 を作製した。表 1 に示すその他の有機 EL 素子も、正孔輸送層、発光層の化合物を表 1 に示す化合物に置き換えた以外は有機 EL 素子 1-1 と同じ方法で作製した。上記で使用した化合物の構造を以下に示す。

#### 【0260】



【表 1】

※1	発光層										第一正孔輸送層										※9	※10	備考
	リン光性化合物					ホスト化合物					正孔輸送材料					※7							
	※2	※3	※4	※2	※3	※5	※6	膜厚 (nm)	※2	分子重	※6 (nm)	※3 (Ip1) (eV)	※5 (Ea1) (eV)	膜厚 (nm)									
		(Ip3) (eV)	(eV)		(nm)	(Ip2) (eV)									(Ea2) (eV)		(nm)						
1-1	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	α-NPD	588.3	5.4	2.3	25	0.6	0.2	0.2	0.8	比較例				
1-2	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	HTM-1	502.7	5.6	2.0	25	0.4	0	0.5	1.1	比較例				
1-3	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	1-56	872.5	4.0	2.0	25	0.6	0.2	0.5	1.1	本発明				
1-4	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	1-35	600.8	4.5	2.1	25	0.4	0	0.4	1	本発明				
1-5	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	1-1	626.9	4.23	2.0	25	0.4	0	0.5	1.1	本発明				
1-6	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	1-10	599.9	4.25	2.1	25	0.3	-0.1	0.4	1	本発明				
1-7	Ir-1	5.6	3.1	495	CBP	6.0	2.5	465	35	1-12	870.2	4.30	2.1	25	0.4	0	0.4	1	本発明				
1-8	Ir-1	5.6	3.1	495	2-37	6.0	2.4	410	35	1-56	872.5	4.40	2.0	25	0.6	0.2	0.4	1.1	本発明				
1-9	Ir-1	5.6	3.1	495	2-37	6.0	2.4	410	35	1-35	600.8	4.15	2.0	25	0.4	0	0.4	1.1	本発明				
1-10	Ir-1	5.6	3.1	495	2-37	6.0	2.4	410	35	1-1	626.9	4.23	2.0	25	0.4	0	0.4	1.1	本発明				
1-11	Ir-1	5.6	3.1	495	2-37	6.0	2.4	410	35	1-49	1101.5	4.20	2.1	25	0.4	0	0.3	1	本発明				
1-12	Ir-1	5.6	3.1	495	2-2	6.0	2.4	415	35	1-49	1101.5	4.20	2.1	25	0.4	0	0.3	1	本発明				
1-13	Ir-12	5.8	2.7	458	CBP	6.0	2.5	465	45	α-NPD	588.3	5.24	2.3	25	0.6	0.4	0.2	0.4	比較例				
1-14	Ir-12	5.8	2.7	458	CBP	6.0	2.5	465	45	HTM-1	502.7	4.23	2.0	25	0.4	0.2	0.5	0.7	比較例				
1-15	Ir-12	5.8	2.7	458	CBP	6.0	2.5	465	45	1-35	600.8	4.15	2.1	25	0.4	0.2	0.4	0.6	本発明				
1-16	Ir-12	5.8	2.7	458	2-37	6.0	2.4	410	45	1-35	600.8	4.15	2.1	25	0.4	0.2	0.3	0.6	本発明				
1-17	Ir-12	5.8	2.7	458	2-37	6.0	2.4	410	45	1-56	872.5	4.40	2.0	25	0.6	0.4	0.4	0.7	本発明				
1-18	Ir-12	5.8	2.7	458	2-27	6.1	2.5	415	45	1-1	626.9	4.23	2.0	25	0.5	0.2	0.5	0.7	本発明				
1-19	Ir-12	5.8	2.7	458	2-46	6.0	2.4	412	45	1-23	641.9	4.25	2.0	25	0.4	0.2	0.4	0.7	本発明				

※4: リン光発光極大波長

※7: Ip2-Ip1

※2: 化合物名

※3: イオン化ポテンシャル

※6: リン光スペクトルの0-0バンド

※9: Ea2-Ea1

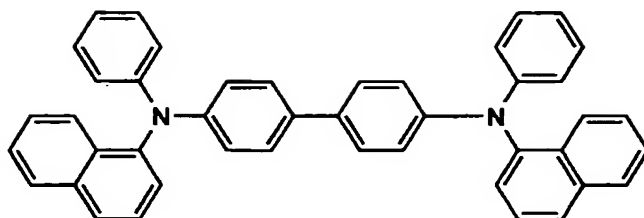
※8: Ip3-Ip1

※1: 有機EL素子

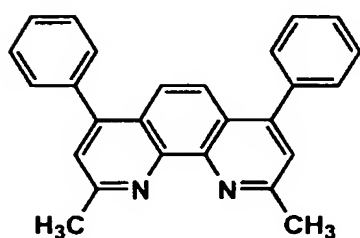
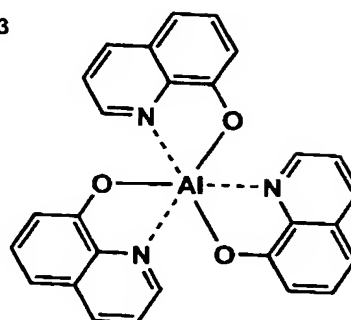
※5: 電子親和力

【0261】

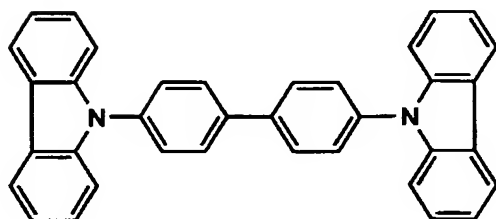
【化 6 8】

 $\alpha$ -NPD

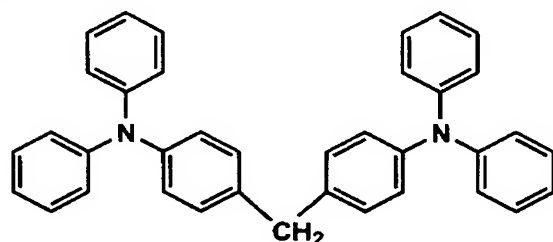
BCP

Alq<sub>3</sub>

CBP



HTM-1



【0 2 6 2】

〈有機EL素子1-1～1-19の評価〉

以下のようにして作製した有機EL素子1-1～1-19の評価を行い、その結果を表2に示す。

## 【0263】

(外部取りだし量子効率)

作製した有機EL素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5mA/cm<sup>2</sup>定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。

## 【0264】

(lm/W)

分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した輝度を用いて次式よりlm/Wを求めた。

$$lm/W = (\text{輝度 (cd/m}^2) \times \pi) / (\text{電流密度 (A/m}^2) \times \text{電圧 (V)})$$

(経時劣化)

有機EL素子を50℃で7日間保存した後に、上記外部取りだし量子効率の測定法で外部取りだし量子効率を測定した。

## 【0265】

発光効率、lm/W、経時劣化の測定結果は、有機EL素子1-1~1-12については、有機EL素子1-1の測定値を100とした時の相対値で表し、有機EL素子1-13~1-19については、有機EL素子1-13を100としたときの相対値で表した。

## 【0266】

【表 2】

有機EL素子	外部取りだし 量子効率	lm/W	経時劣化	備 考
1-1	100(基準)	100(基準)	100(基準)	比較例
1-2	105	108	40	比較例
1-3	108	110	160	本発明
1-4	116	115	120	本発明
1-5	117	117	112	本発明
1-6	117	116	68	本発明
1-7	119	118	152	本発明
1-8	123	130	164	本発明
1-9	141	140	124	本発明
1-10	140	138	96	本発明
1-11	138	138	168	本発明
1-12	137	136	140	本発明
1-13	100(基準)	100(基準)	100(基準)	比較例
1-14	104	105	40	比較例
1-15	108	105	112	本発明
1-16	197	132	120	本発明
1-17	351	150	168	本発明
1-18	250	147	72	本発明
1-19	240	140	100	本発明

## 【0267】

表2から、本発明の有機EL素子は、外部取り出し量子効率、lm/Wに優れており、さらに、外部取り出し量子効率の経時劣化が抑えられていることが分かった。

## 【0268】

## 実施例2

〈有機EL素子2-1～2-4の作製〉

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO（インジウムチンオキシド）を100nm製膜した基板（NHテクノグラス社製NA

45) にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにCuPcを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートに1-56を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキュプロイン(BCP)を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-1を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlq<sub>3</sub>を200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

#### 【0269】

次いで、真空槽を $4 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した後、CuPcの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で透明支持基板に蒸着し、第二正孔輸送層を設けた。更に、1-56の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で前記第二正孔輸送層上に蒸着し第一正孔輸送層を設けた。さらに、CBPとIr-1の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ 、 $0.012 \text{ nm/sec}$ で前記第一正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。更に、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で前記発光層の上に蒸着して膜厚 $10 \text{ nm}$ の正孔阻止の役割も兼ねた電子輸送層を設けた。その上に、更に、Alq<sub>3</sub>の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で前記電子輸送層の上に蒸着して更に膜厚 $40 \text{ nm}$ の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

#### 【0270】

引き続きフッ化リチウム $0.5 \text{ nm}$ 及びアルミニウム $110 \text{ nm}$ を蒸着して陰極を形成し、有機EL素子2-1を作製した。表3に示すその他の有機EL素子も、正孔輸送層、発光層の化合物を表3に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子2-1と同じ方法で作製した。上記で使用した化合物の構造を以下に示す。

【0271】

【表3】

発光層																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																											
リン光性化合物						ホスト化合物						第一正孔輸送層												第二正孔輸送層																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																			

※1:有機EL素子

※2:化合物名

※3:イオン化ポテンシャル

※4:リン光発光極大波長

※5:電子親和力

※6:リン光スペクトルの0-0バンド

※7:lp2-lp1

※8:lp3-lp1

※9:lp1-lp4

※10: Ea2-Ea1

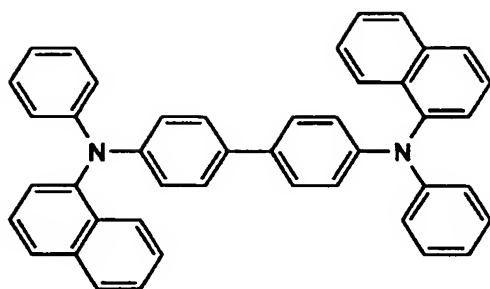
※11: T3-Ea1

※12: PEPOT/PSS

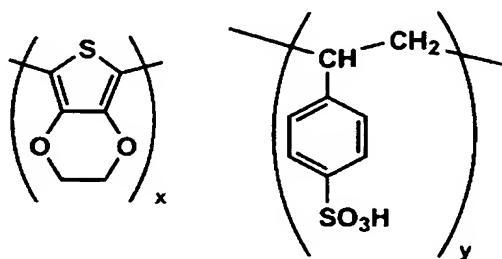
【0272】

## 【化 6 9】

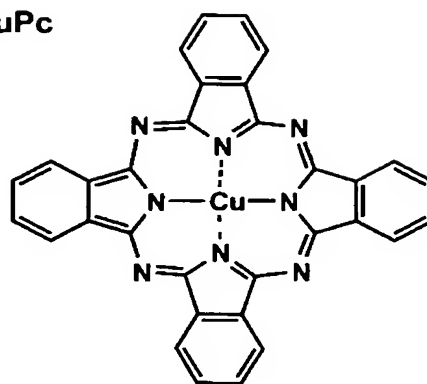
NPD



PEDOT/PSS



CuPc



## 【0273】

〈有機EL素子2-1～2-4の評価〉

実施例1と同様にして有機EL素子の評価を行った。

## 【0274】

外部取り出し量子効率、 $1\text{ m/W}$ 、経時劣化の測定結果は、有機EL素子2-1、2-2、2-3、2-4については、それぞれ、有機EL素子1-2、1-8、1-15、1-10を100とした時の相対値で表した。結果を表4に示す。

## 【0275】

【表 4】

有機EL素子	外部取りだし 量子効率	lm/W	経時劣化	備 考
2-1	102	130	108	本発明
2-2	105	120	110	本発明
2-3	103	130	109	本発明
2-4	105	125	108	本発明

## 【0276】

表4から、 $0.1 < I_{p1} - I_{p4} < 0.7$ を満たす第二正孔輸送層を設けることで本発明の有機EL素子は、より一層発光効率、lm/Wが優れ、さらに、より一層経時劣化が抑えられていることが分かった。

## 【0277】

## 実施例3

前記実施例で作製した本発明緑色及び青色発光有機EL素子と、本発明の緑色発光有機EL素子のリン光性化合物をBtp2Ir(acac)に置き換えた以外は同様にして作製した赤色発光有機EL素子を同一基板上に並置し、図1に示すアクティブマトリクス方式フルカラー表示装置を作製した。図2には作製したフルカラー表示装置の表示部Aの模式図のみを示した。即ち同一基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、並置した複数の画素3（発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素等）とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそれぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続している（詳細は図示せず）。前記複数の画素3は、それぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このように各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示が可能となる。

## 【0278】



フルカラー表示装置を駆動することにより、輝度の高く耐久性の良好な、鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

### 【0279】

#### 【発明の効果】

本発明により、発光効率が高い有機EL素子、照明装置および表示装置を提供することができた。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。

##### 【図2】

表示部の模式図である。

##### 【図3】

画素の模式図である。

##### 【図4】

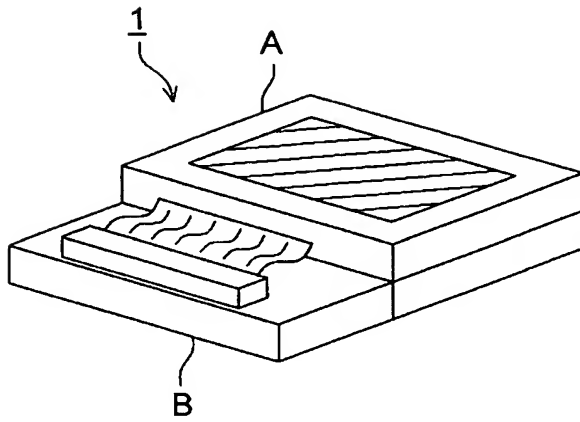
パッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

#### 【符号の説明】

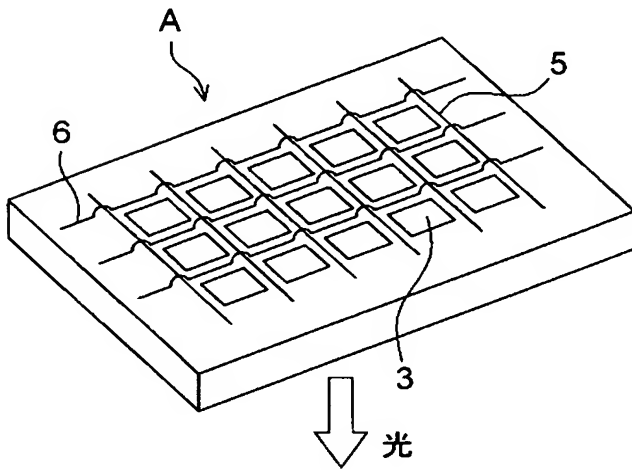
- 1 ディスプレイ
- 3 画素
- 5 走査線
- 6 データ線
- 7 電源ライン
- 10 有機EL素子
- 11 スイッチングトランジスタ
- 12 駆動トランジスタ
- 13 コンデンサ
- A 表示部
- B 制御部

【書類名】 図面

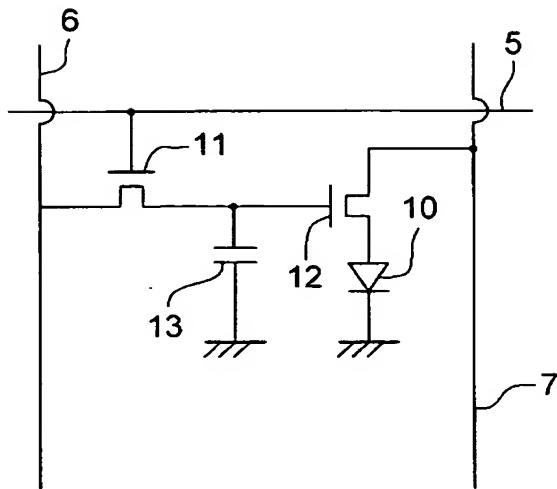
【図 1】



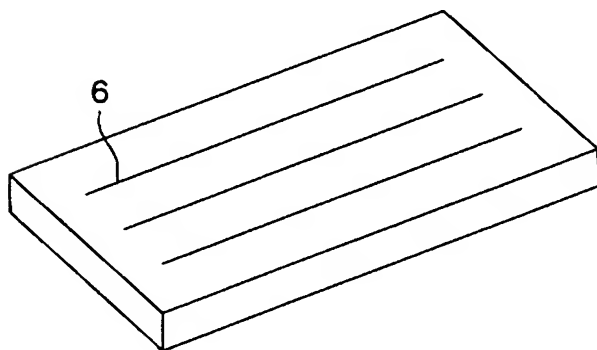
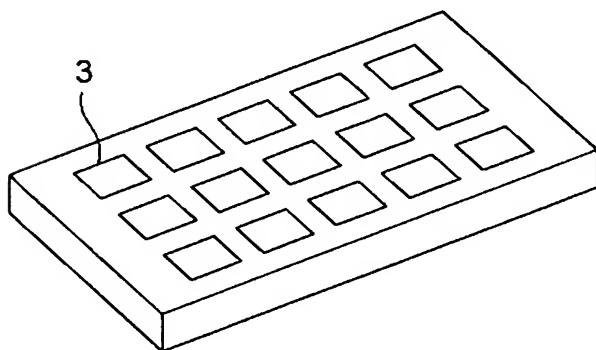
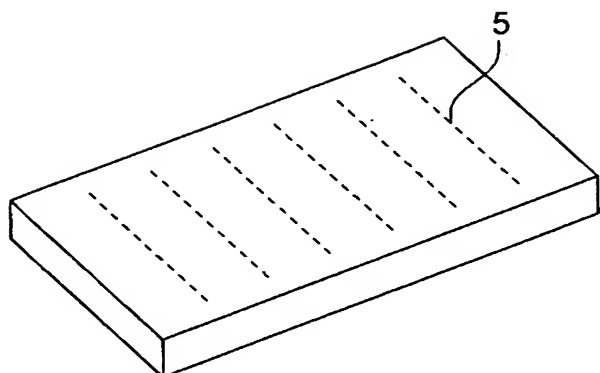
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 発光効率が高い有機EL素子、照明装置および表示装置を提供する。

【解決手段】 リン光性化合物を含有する発光層と、該発光層に隣接し正孔輸送材料を含有する正孔輸送層と、を少なくとも有する発光素子において、前記正孔輸送材料は、リン光スペクトルの0-0バンドが300～450nmであり、分子量が550以上であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 8 5 0 2 3
受付番号	5 0 3 0 0 4 9 1 6 6 0
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0 0 9 3
作成日	平成 1 5 年 3 月 2 7 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成 1 5 年 3 月 2 6 日
-------	--------------------

次頁無

特願 2003-085023

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000001270]

1. 変更年月日 1990年 8月14日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都新宿区西新宿1丁目26番2号  
氏 名 コニカ株式会社
2. 変更年月日 2003年 8月 4日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 東京都新宿区西新宿1丁目26番2号  
氏 名 コニカミノルタホールディングス株式会社
3. 変更年月日 2003年 8月21日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都千代田区丸の内一丁目6番1号  
氏 名 コニカミノルタホールディングス株式会社